



# Formulation et étude des propriétés mécaniques d'agrobétons légers isolants à base de balles de riz et de chènevotte pour l'éco-construction

Morgan Chabannes

## ► To cite this version:

Morgan Chabannes. Formulation et étude des propriétés mécaniques d'agrobétons légers isolants à base de balles de riz et de chènevotte pour l'éco-construction. Matériaux composites et construction. Université Montpellier, 2015. Français. NNT : 2015MONT008 . tel-01316947

**HAL Id: tel-01316947**

**<https://theses.hal.science/tel-01316947>**

Submitted on 17 May 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE

Pour obtenir le grade de  
**Docteur**

Délivré par **l'Université de Montpellier**  
*Faculté des Sciences*

Préparée au sein de l'école doctorale SP-SA  
Et de l'unité de recherche C2MA-Ecole des Mines d'Alès

Spécialité : **Génie des Procédés**

Présentée par **Morgan CHABANNES**

**Formulation et étude des propriétés  
mécaniques d'agrobétons légers  
isolants à base de balles de riz et de  
chènevotte pour l'éco-construction**

Soutenue le 26 Novembre 2015 devant le jury composé de :



M. Sofiane AMZIANE, Professeur, Université Blaise Pascal  
Mme. Michèle T'KINT, Professeur, Université de Picardie  
M. Gilles ESCADEILLAS, Professeur, Université de Toulouse  
M. Xavier ROUAU, Directeur de Recherche, INRA Montpellier  
M. Frédéric BECQUART, Maître Assistant, Mines Douai  
M. Eric GARCIA-DIAZ, Professeur, Mines Alès  
M. Laurent CLERC, Maître Assistant, Mines Alès  
M. Jean-Charles BÉNÉZET, Maître de Recherche, Mines Alès

Rapporteur  
Rapporteur  
Président  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Directeur de  
Thèse

# Remerciements

Ce travail de thèse a été financé par l'Ecole des Mines d'Alès (EMA) et s'est déroulé au Centre des Matériaux des Mines d'Alès (C2MA) de 2012 à 2015.

Je remercie en premier lieu mon directeur de thèse Jean-Charles Bénézet qui m'a accordé sa confiance pour mener à bien la mission qui m'a été confiée durant ces trois années. Il a introduit l'idée de valoriser un sous-produit original qui a donné un caractère assez innovant à ce travail de recherche. J'ai apprécié l'autonomie dont j'ai pu bénéficier durant cette longue expérience. Je remercie également Laurent Clerc (encadrant de proximité) pour son aide lors de certaines campagnes de fabrication d'éprouvettes et cela s'est toujours déroulé dans une ambiance agréable et joviale.

Je tiens ensuite à remercier vivement le Pr. Eric Garcia-Diaz, responsable du pôle MSGC (Matériaux et Structures du Génie Civil) du C2MA, qui s'est beaucoup intéressé à mon travail. Ses compétences scientifiques m'ont permis d'explorer des voies intéressantes et judicieuses mais également d'aiguiller mes recherches en fonction des résultats obtenus. Les discussions scientifiques que nous avons eues autour des mécanismes d'hydratation et de carbonatation ont été très appréciables et bénéfiques pour éclaircir mes réflexions. Il ne fait nul doute que ses critiques apportées sur les articles de revue ont pu permettre d'améliorer leur qualité. Je lui exprime donc une grande reconnaissance.

J'exprime ma gratitude aux membres du jury qui ont accepté de rapporter mon travail de thèse. Merci tout particulièrement au Pr. Sofiane Amziane qui a joué un rôle important dans ma progression vers la thèse de doctorat. Le projet de recherche qu'il m'a confié dans le cadre du mémoire de Master a été très formateur et m'a incité à poursuivre en thèse dans ce domaine des agrobétons isolants. Il m'a toujours soutenu pour parvenir à cet objectif et pour cela je le remercie sincèrement. Merci également au Pr. Michèle T'Kint d'avoir accepté de rapporter ce manuscrit. Bien évidemment, j'exprime mes remerciements aux membres du jury qui ont aussi bien voulu examiner mon travail. Je tiens à souligner ici les remarques constructives et pertinentes qui ont pu être apportées lors des réunions de comité de thèse par Xavier Rouau et par le Pr. Gilles Escadeillas que je remercie particulièrement pour son point de vue de spécialiste. Je remercie également Frédéric Becquart pour sa participation au jury comme examinateur.

J'adresse ensuite mes remerciements à Christian Buisson, ingénieur de recherche du pôle MSGC. J'ai beaucoup apprécié sa disponibilité, son professionnalisme, son investissement et sa gentillesse lorsque nous avons travaillé ensemble. Son aide a notamment été précieuse pour la mise en place du système de carbonatation accélérée. Par ses compétences à la fois

sur le plan technique et expérimental mais également sur de nombreux aspects théoriques, il est évident qu'il a contribué significativement à ce travail de recherche.

Que soit également remercié Marc Longerey (ingénieur de recherche) pour son aide et sa disponibilité lors des tests mécaniques sur les agrobétons et en particulier pour la mise en place des programmes d'essai. Il a été très agréable de travailler ensemble.

Je remercie aussi Jean-Marie Taulemesse (ingénieur de recherche) pour sa patience et l'expérience dont il a fait preuve lors des créneaux d'observation au microscope électronique à balayage (MEB).

Plus généralement, je remercie les personnels techniques du C2MA qui ont pu m'aider à diverses occasions. Je pense notamment à Alain Diaz, Robert Lorquet, Angélique De Neiva ou encore Jacky Bartorello.

Je remercie d'ailleurs l'ensemble du personnel du C2MA. Je pense par exemple à Solange Madec pour la gestion administrative et Claire Longuet pour la mise en forme du manuscrit ainsi que ses réponses à mes nombreuses questions en fin de thèse.

Par la suite, je souhaite remercier Jean-Claude Souche, Etienne Malachanne et Thibaut Marchi pour m'avoir donné l'occasion d'enseigner en formation initiale du département Génie Civil et en formation par apprentissage CMC (Conception et Management de la Construction). J'en profite également pour remercier les étudiants que j'ai eu l'occasion d'encadrer lors des Missions de Recherche & Développement. Ces expériences ont été très enrichissantes.

J'ai eu aussi l'occasion de faire quelques rencontres intéressantes autour de mon sujet de thèse. Je pense notamment à Pierre Delot et Loïc Roso. Nos échanges ont été appréciables et ont pu apporter des éclaircissements à certaines de mes interrogations. J'espère vraiment que le travail collaboratif qui est mené au sein de l'association « Bâtir en Balles » portera ses fruits.

Enfin, j'exprime toute ma reconnaissance et mon affection à ceux qui sont toujours là pour me soutenir et m'encourager, mes parents.



# Table des matières

|                                   |          |
|-----------------------------------|----------|
| <b>INTRODUCTION GÉNÉRALE.....</b> | <b>1</b> |
|-----------------------------------|----------|

|   |          |
|---|----------|
| <b>CHAPITRE 1 ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE .....</b> | <b>5</b> |
|---|----------|

|  |          |
|--|----------|
| <b>I. CONTEXTE ENVIRONNEMENTAL .....</b> | <b>5</b> |
|--|----------|

|  |   |
|--|---|
| I. 1. IMPACT ENVIRONNEMENTAL DU SECTEUR DE LA CONSTRUCTION ..... | 5 |
|--|---|

|  |   |
|--|---|
| I. 2. VERS L'UTILISATION DES ECOMATERIAUX..... | 8 |
|--|---|

|  |           |
|--|-----------|
| <b>II. LES RESSOURCES LIGNOCELLULOSIQUES .....</b> | <b>10</b> |
|--|-----------|

|  |    |
|--|----|
| II. 1. VALORISATION DANS LES MATERIAUX DE CONSTRUCTION ..... | 10 |
|--|----|

|                                  |    |
|----------------------------------|----|
| II. 1. 1. Fibres végétales ..... | 11 |
|----------------------------------|----|

|                                    |    |
|------------------------------------|----|
| II. 1. 2. Granulats végétaux ..... | 12 |
|------------------------------------|----|

|  |    |
|--|----|
| II. 2. ORGANISATION STRUCTURALE À L'ÉCHELLE CELLULAIRE ..... | 13 |
|--|----|

|  |           |
|--|-----------|
| <b>III. MATIERES PREMIERES DU BETON DE CHANVRE .....</b> | <b>14</b> |
|--|-----------|

|                          |    |
|--------------------------|----|
| III. 1. LE CHANVRE ..... | 14 |
|--------------------------|----|

|                             |    |
|-----------------------------|----|
| III. 2. LA CHÈNEVOTTE ..... | 16 |
|-----------------------------|----|

|                                |    |
|--------------------------------|----|
| III. 2. 1. Microstructure..... | 16 |
|--------------------------------|----|

|  |    |
|--|----|
| III. 2. 2. Masses volumiques et porosités..... | 17 |
|--|----|

|   |    |
|---|----|
| III. 2. 3. Capacité d'absorption en eau ..... | 18 |
|---|----|

|   |    |
|---|----|
| III. 2. 4. Sensibilité à la vapeur d'eau..... | 19 |
|---|----|

|  |    |
|--|----|
| III. 2. 5. Conductivité thermique..... | 19 |
|--|----|

|                               |    |
|-------------------------------|----|
| III. 2. 6. Granulométrie..... | 20 |
|-------------------------------|----|

|                                       |    |
|---------------------------------------|----|
| III. 2. 7. Composition chimique ..... | 21 |
|---------------------------------------|----|

|                                   |    |
|-----------------------------------|----|
| III. 3. LES LIANTS MINÉRAUX ..... | 21 |
|-----------------------------------|----|

|                                     |    |
|-------------------------------------|----|
| III. 3. 1. Le ciment Portland ..... | 22 |
|-------------------------------------|----|

|   |    |
|---|----|
| III. 3. 2. Les chaux de construction..... | 26 |
|---|----|

|   |    |
|---|----|
| III. 3. 3. Choix d'un liant pour les agrobétons ..... | 38 |
|---|----|

|   |           |
|---|-----------|
| <b>IV. LE BETON DE CHANVRE ET SES PROPRIETES.....</b> | <b>38</b> |
|---|-----------|

|  |    |
|--|----|
| IV. 1. FORMULATION ET MISE EN ŒUVRE..... | 38 |
|--|----|

|   |    |
|---|----|
| IV. 2. PROPRIETES HYGROTHERMIQUES ..... | 42 |
|---|----|

|  |    |
|--|----|
| IV. 2. 1. Conductivité thermique ..... | 43 |
|--|----|

|  |    |
|--|----|
| IV. 2. 2. Valeur tampon hydrique (MBV : Moisture buffer value) ..... | 45 |
|--|----|

|                                    |    |
|------------------------------------|----|
| IV. 3. PROPRIETES MECANIQUES ..... | 47 |
|------------------------------------|----|

|   |           |
|---|-----------|
| IV. 3. 1. Comportement mécanique.....                                   | 47        |
| IV. 3. 1. Influence de la teneur en liant .....                         | 48        |
| IV. 3. 2. Influence de la nature du liant .....                         | 49        |
| IV. 3. 3. Influence de l'intensité du compactage initial .....          | 51        |
| IV. 3. 4. Influence des conditions de cure.....                         | 52        |
| IV. 3. 5. Influence de la taille des granulats .....                    | 53        |
| IV. 3. 6. Age du béton .....  | 54        |
| IV. 3. 7. Pathologies liées aux interactions liant/végétal .....        | 55        |
| <b>V. UNE RESSOURCE INNOVANTE : LA BALLE DE RIZ .....</b>               | <b>64</b> |
| V. 1. LA BALLE DE RIZ .....   | 64        |
| V. 1. 1. Gisement et applications.....                                  | 64        |
| V. 1. 2. Caractéristiques.....  | 66        |
| V. 2. VALORISATION SANS CALCINATION DANS DES MATRICES CIMENTAIRES ..... | 68        |
| <b>VI. CONCLUSION ET DEMARCHE DU TRAVAIL DE THESE .....</b>             | <b>71</b> |

## **CHAPITRE 2 MATÉRIAUX ET MÉTHODES..... 73**

|   |           |
|---|-----------|
| <b>I. MATERIAUX.....</b>  | <b>73</b> |
| I. 1. GRANULATS VEGETAUX .....  | 73        |
| I. 2. LIANT A BASE DE CHAUX .....                                     | 74        |
| <b>II. FORMULATION ET MISE EN ŒUVRE .....</b>                         | <b>76</b> |
| II. 1. AGROBETONS .....   | 76        |
| II. 1. 1. Dosages .....   | 76        |
| II. 1. 2. Mise en œuvre.....  | 76        |
| II. 2. MORTIERS DE CHAUX.....   | 76        |
| <b>III. CONDITIONS DE CURE .....</b>                                  | <b>77</b> |
| III. 1. CONSERVATION NATURELLE.....                                   | 77        |
| III. 2. CARBONATATION ACCELEREE .....                                 | 77        |
| III. 3. CURE EN HUMIDITE SATUREE ET A TEMPERATURE ELEVEE .....        | 78        |
| <b>IV. METHODES DE CARACTERISATION .....</b>                          | <b>79</b> |
| IV. 1. PARTICULES VEGETALES.....                                      | 79        |
| IV. 1. 1. Granulométrie par analyse d'image .....                     | 79        |
| IV. 1. 2. Microscopie électronique à balayage (MEB).....              | 81        |
| IV. 1. 3. Porosimétrie par intrusion de mercure (PIM).....            | 82        |
| IV. 1. 4. Coefficient d'absorption d'eau des granulats végétaux ..... | 82        |

|  |    |
|--|----|
| IV. 1. 5. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) ..... | 83 |
| IV. 2. AGROBETONS.....   | 84 |
| IV. 2. 1. Estimation des porosités dans les agrobétons.....              | 84 |
| IV. 2. 2. Mesure de la conductivité thermique au fil chaud .....         | 85 |
| IV. 2. 3. Essais de résistance en compression .....                      | 87 |
| IV. 2. 4. Analyse thermogravimétrique (ATG).....                         | 88 |
| IV. 3. MORTIERS A BASE DE CHAUX.....                                     | 90 |
| IV. 3. 1. Caractérisation mécanique.....                                 | 90 |
| IV. 3. 2. Caractérisation du durcissement .....                          | 90 |

### **CHAPITRE 3 DE LA CARACTÉRISATION DES PARTICULES VÉGÉTALES À LA FORMULATION DES AGROBÉTONS..... 91**

#### **PRÉAMBULE..... 91**

#### **ARTICLE A ..... 92**

##### **I. INTRODUCTION..... 93**

##### **II. MATERIALS AND METHODS ..... 96**

###### **II. 1. RAW MATERIALS ..... 96**

###### **II. 1. 1. Natural particles..... 96**

###### **II. 1. 2. Mineral binder..... 96**

###### **II. 2. EXPERIMENTAL PROCEDURES ..... 97**

###### **II. 2. 1. Characterization of the natural particles ..... 97**

###### **II. 2. 2. Concrete design ..... 98**

###### **II. 2. 3. Macroscopic properties of concrete materials ..... 100**

##### **III. RESULTS AND DISCUSSION ..... 102**

###### **III. 1. CHARACTERIZATION OF THE VEGETABLE PARTICLES ..... 102**

###### **III. 1. 1. Physical and morphological properties..... 102**

###### **III. 1. 2. Sensitivity of particles to water..... 106**

###### **III. 1. 3. Chemical analysis..... 107**

###### **III. 2. DESIGN, WEIGHT MONITORING AND POROSITY OF CONCRETE SPECIMENS ..... 107**

###### **III. 2. 1. Mix proportions..... 107**

###### **III. 2. 2. Weight monitoring during hydric stabilization..... 109**

###### **III. 2. 3. Porosity estimation of concrete mixtures ..... 110**

|   |            |
|---|------------|
| III. 3. THERMAL PROPERTIES .....              | 111        |
| III. 4. MECHANICAL PROPERTIES .....           | 112        |
| III. 5. MATRIX ANALYSIS BY MEANS OF TGA ..... | 115        |
| <b>IV. CONCLUSION.....</b>                    | <b>117</b> |

|                                       |                   |
|---------------------------------------|-------------------|
| <b><u>BILAN DU CHAPITRE .....</u></b> | <b><u>118</u></b> |
|---------------------------------------|-------------------|

|  |                   |
|--|-------------------|
| <b><u>CHAPITRE 4 SUIVI DES PERFORMANCES MECANIQUES ET DU DURCISSEMENT A LONG TERME SUIVANT LE MODE DE CONSERVATION ET EFFET D'UNE CURE EN CARBONATATION ACCELEREE.....</u></b> | <b><u>121</u></b> |
|--|-------------------|

|                              |                   |
|------------------------------|-------------------|
| <b><u>PRÉAMBULE.....</u></b> | <b><u>121</u></b> |
|------------------------------|-------------------|

|                               |                   |
|-------------------------------|-------------------|
| <b><u>ARTICLE B .....</u></b> | <b><u>123</u></b> |
|-------------------------------|-------------------|

|                             |            |
|-----------------------------|------------|
| <b>I. INTRODUCTION.....</b> | <b>124</b> |
|-----------------------------|------------|

|  |            |
|--|------------|
| <b>II. MATERIALS AND METHODS .....</b> | <b>127</b> |
|--|------------|

|                            |     |
|----------------------------|-----|
| II. 1. RAW MATERIALS ..... | 127 |
|----------------------------|-----|

|                             |     |
|-----------------------------|-----|
| II. 1. 1. Lime binder ..... | 127 |
|-----------------------------|-----|

|                                     |     |
|-------------------------------------|-----|
| II. 1. 2. Reaction mechanisms ..... | 127 |
|-------------------------------------|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 2. PREPARATION AND CURING OF CONCRETE SPECIMENS..... | 128 |
|--|-----|

|                                 |     |
|---------------------------------|-----|
| II. 2. 1. Concrete design ..... | 128 |
|---------------------------------|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 2. 2. Curing under natural conditions..... | 128 |
|--|-----|

|   |     |
|---|-----|
| II. 2. 3. Initial conditioning before accelerated carbonation curing (ACC)..... | 129 |
|---|-----|

|   |     |
|---|-----|
| II. 2. 4. Accelerated carbonation in a CO <sub>2</sub> curing enclosure ..... | 131 |
|---|-----|

|                               |     |
|-------------------------------|-----|
| II. 3. TESTING PROGRAMS ..... | 133 |
|-------------------------------|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 3. 1. Compressive strength measurements..... | 133 |
|--|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 3. 2. Carbonation depth by phenolphthalein spray ..... | 133 |
|--|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 3. 3. Characterization and evolution of the binder hardening by TGA..... | 134 |
|--|-----|

|  |            |
|--|------------|
| <b>III. RESULTS AND DISCUSSION .....</b> | <b>135</b> |
|--|------------|

|  |     |
|--|-----|
| III. 1. CO <sub>2</sub> CONSUMPTION AND WEIGHT GAIN DURING ACC ..... | 135 |
|--|-----|

|   |     |
|---|-----|
| III. 2. MECHANICAL CHARACTERISTICS IN COMPRESSION ..... | 137 |
|---|-----|

|  |     |
|--|-----|
| III. 2. 1. Under natural conditions..... | 137 |
|--|-----|

|   |     |
|---|-----|
| III. 2. 2. After accelerated carbonation curing (ACC) ..... | 140 |
|---|-----|

|   |     |
|---|-----|
| III. 3. CHARACTERIZATION AND MONITORING OF THE BINDER HARDENING ..... | 141 |
|---|-----|

|  |            |
|--|------------|
| III. 3. 1. Phenolphthalein spray test.....                             | 141        |
| III. 3. 2. TGA investigations .....                                    | 142        |
| III. 3. 3. Conclusion about the quality of the lime-based binder ..... | 146        |
| <b>IV. CONCLUSION.....</b>   | <b>147</b> |

|                                       |                   |
|---------------------------------------|-------------------|
| <b><u>BILAN DU CHAPITRE .....</u></b> | <b><u>148</u></b> |
|---------------------------------------|-------------------|

|  |                   |
|--|-------------------|
| <b><u>CHAPITRE 5 EFFET DES CONDITIONS DE CURE ET D'UN TRAITEMENT DES<br/>GRANULATS A L'EAU DE CHAUX SUR LES PROPRIETES MECANIQUES DES<br/>AGROBETONS .....</u></b> | <b><u>151</u></b> |
|--|-------------------|

|                              |                   |
|------------------------------|-------------------|
| <b><u>PRÉAMBULE.....</u></b> | <b><u>151</u></b> |
|------------------------------|-------------------|

|                               |                   |
|-------------------------------|-------------------|
| <b><u>ARTICLE C .....</u></b> | <b><u>153</u></b> |
|-------------------------------|-------------------|

|                                    |                   |
|------------------------------------|-------------------|
| <b><u>I. INTRODUCTION.....</u></b> | <b><u>154</u></b> |
|------------------------------------|-------------------|

|   |                   |
|---|-------------------|
| <b><u>II. MATERIALS AND METHODS .....</u></b> | <b><u>157</u></b> |
|---|-------------------|

|   |     |
|---|-----|
| II. 1. LIME-WATER TREATMENT OF PLANT AGGREGATES ..... | 157 |
|---|-----|

|                                    |     |
|------------------------------------|-----|
| II. 1. 1. Treatment procedure..... | 157 |
|------------------------------------|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 1. 2. FTIR spectroscopy and SEM observations of aggregates ..... | 157 |
|--|-----|

|                                  |     |
|----------------------------------|-----|
| II. 1. 3. Water absorption ..... | 157 |
|----------------------------------|-----|

|  |     |
|--|-----|
| II. 2. SAMPLES PREPARATION AND MANUFACTURING ..... | 158 |
|--|-----|

|                              |     |
|------------------------------|-----|
| II. 2. 1. Lime mortars ..... | 158 |
|------------------------------|-----|

|                                      |     |
|--------------------------------------|-----|
| II. 2. 2. Plant-based concretes..... | 159 |
|--------------------------------------|-----|

|                                |     |
|--------------------------------|-----|
| II. 3. CURING CONDITIONS ..... | 159 |
|--------------------------------|-----|

|                                   |     |
|-----------------------------------|-----|
| II. 4. COMPRESSIVE STRENGTH ..... | 161 |
|-----------------------------------|-----|

|                              |     |
|------------------------------|-----|
| II. 4. 1. Lime mortars ..... | 161 |
|------------------------------|-----|

|                                      |     |
|--------------------------------------|-----|
| II. 4. 2. Plant-based concretes..... | 161 |
|--------------------------------------|-----|

|                                    |     |
|------------------------------------|-----|
| II. 5. THERMAL ANALYSIS (TGA)..... | 161 |
|------------------------------------|-----|

|   |     |
|---|-----|
| II. 6. SEM POLISHED CROSS SECTION OF LIME MORTARS ..... | 162 |
|---|-----|

|   |     |
|---|-----|
| II. 7. SEM OBSERVATIONS OF THE TRANSITION ZONE BETWEEN PLANT AGGREGATES AND LIME..... | 162 |
|---|-----|

|   |                   |
|---|-------------------|
| <b><u>III. RESULTS AND DISCUSSION .....</u></b> | <b><u>163</u></b> |
|---|-------------------|

|   |     |
|---|-----|
| III. 1. EFFECT OF THE LIME-WATER TREATMENT (LWT)..... | 163 |
|---|-----|

|   |     |
|---|-----|
| III. 1. 1. Mechanical properties of plant-based concretes ..... | 163 |
|---|-----|

|   |     |
|---|-----|
| III. 1. 2. Chemical and textural modification of plant aggregates ..... | 165 |
|---|-----|

|  |                       |
|--|-----------------------|
| III. 2. EFFECT OF MOIST CURING AND ELEVATED TEMPERATURE..... | 169                   |
| III. 2. 1. Lime mortars .....                                | 169                   |
| III. 2. 2. Plant-based concretes .....                       | 174                   |
| <b>IV. CONCLUSION.....</b>                                   | <b>181</b>            |
| <br><b><u>BILAN DU CHAPITRE .....</u></b>                    | <br><b><u>182</u></b> |
| <br><b><u>CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES .....</u></b>  | <br><b><u>185</u></b> |
| <br><b><u>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</u></b>          | <br><b><u>192</u></b> |
| <br><b><u>TABLE DES FIGURES.....</u></b>                     | <br><b><u>208</u></b> |
| <br><b><u>LISTE DES TABLEAUX .....</u></b>                   | <br><b><u>213</u></b> |

# Introduction générale

En France, le secteur du bâtiment est responsable du quart des émissions de gaz à effet de serre (GES) et il est le premier poste de consommation d'énergie. Les politiques publiques en vigueur insistent sur la nécessité de réduire l'impact environnemental des bâtiments en renforçant notamment le niveau d'exigence de la réglementation thermique (RT2012) pour parvenir à l'objectif de diviser par 4 les émissions de GES d'ici à 2050. En raison du faible taux de renouvellement du parc de bâtiments français, une attention toute particulière doit être apportée à la rénovation énergétique des bâtiments existants.

L'énergie nécessaire lors de la phase d'occupation et d'exploitation des bâtiments tend à réduire de plus en plus car les dispositifs d'isolation ont largement évolué depuis les années 1970. Il est donc primordial de se préoccuper de l'ensemble du cycle de vie des bâtiments et de prendre en compte l'énergie incorporée dans les matériaux de construction. La recherche de matériaux à faible impact environnemental apparaît comme indispensable pour contribuer plus efficacement à la réduction des émissions de CO<sub>2</sub> générées par l'industrie du bâtiment. Les écomatériaux se présentent alors comme une alternative écologique aux matériaux de construction usuels qui font souvent appel à des procédés d'extraction et de fabrication très énergivores. Bien qu'ils ne soient pas définis par des critères précis à l'heure actuelle, les écomatériaux de construction se caractérisent par leur qualité environnementale (impact carbone global), leurs performances hygrothermiques (confort intérieur, inertie thermique, perméabilité à la vapeur d'eau) ou encore le caractère local des matières premières qu'ils incorporent.

Les parois traditionnelles des bâtiments du parc résidentiel associent un élément isolant à la structure porteuse. Les laines minérales et le polystyrène représentent presque la totalité du marché des matériaux d'isolation malgré leur empreinte carbone très élevée. Face aux problèmes d'humidité et de condensation que l'on peut constater sur les systèmes classiques d'enveloppes comprenant plusieurs couches de matériaux (blocs béton – isolant – plâtre), les blocs à isolation dite répartie comme le béton cellulaire ou les briques de terre cuite se sont développés. Malgré leurs propriétés hygrothermiques assez intéressantes, ces matériaux à la fois porteurs et isolants sont bien loin d'être exemplaires d'un point de vue environnemental (ressources non renouvelables, énergie grise très élevée).

Depuis quelques décennies, le retour à des modes de construction plus anciens associant des matières d'origine végétale avec un liant minéral suscite un intérêt grandissant. Le label « bâtiment biosourcé » vise à promouvoir l'utilisation de ressources renouvelables et locales

(paille de chanvre, lin, ouate de cellulose, laine de mouton) permettant d'isoler les bâtiments en contribuant également à un stockage temporaire de carbone durant le cycle de vie.

Le béton de chanvre, qui correspond à l'association d'un granulat de chènevotte (issue du broyage de la tige de chanvre) avec un liant minéral généralement à base de chaux, a été développé depuis le début des années 1990. Cet agrobéton dont le dosage en granulats végétaux est majoritaire en volume a fait l'objet de nombreux travaux de recherche. Les granulats végétaux apportent à ce matériau une triple porosité interconnectée responsable de propriétés hygrothermiques et acoustiques très attrayantes. Ses propriétés mécaniques dépendent de nombreux facteurs comme la méthode de mise en œuvre, le type de liant utilisé et son dosage, la variété de chènevotte utilisée, sa taille ou encore les conditions de cure du béton. Lorsque le béton de chanvre est formulé à partir d'un liant à base de chaux dont le processus de durcissement s'échelonne sur plusieurs mois (carbonatation aérienne), il est marqué par une évolution assez notable de ses performances mécaniques en fonction de son âge. Sa faible résistance mécanique après 28 jours de cure ne lui permet pas d'être utilisé comme matériau porteur mais principalement comme matériau de remplissage. Le moyen de mise en œuvre le plus répandu pour les murs correspond au béton de chanvre banché. Le mélange chaux/chènevotte est alors mis en place par un compactage manuel de lits successifs in-situ et en association avec une structure porteuse en bois. Par ailleurs, le manque de recul par rapport à la durabilité de ce matériau peut apparaître comme un point critique qui associé à sa faible résistance mécanique peut contribuer à limiter son utilisation vis-à-vis des autres matériaux de construction porteurs et isolants.

Un tel contexte a amené plusieurs chercheurs à se pencher sur la fabrication de blocs de bétons de chanvre à résistance mécanique plus élevée en s'assurant toutefois de ne pas diminuer leur pouvoir isolant. Certains procédés comme le traitement préalable des granulats avant leur association avec le liant minéral ou l'utilisation d'adjuvants et d'additions minérales ont pu permettre de s'orienter vers la confection d'éléments préfabriqués dont la résistance en compression avoisine celle des blocs de béton creux.

La majorité des travaux de recherche au sujet des agrobétons légers et isolants concerne l'étude des bétons de chanvre. Certains travaux s'intéressent également à la valorisation des anas de lin ou des copeaux de bois. Le caractère local du sous-produit végétal utilisé revêt une grande importance pour le développement d'un écomatériau. De plus, il peut permettre de diversifier la ressource végétale (par exemple le granulat de tournesol pour la région Midi-Pyrénées). Dans le cadre de cette étude, le contexte local de la région Languedoc-Roussillon nous a orientés vers la valorisation de la balle de riz de Camargue. Il s'agit d'un sous-produit de la riziculture très peu utilisé. La cendre issue de sa calcination est souvent utilisée comme filler pouzzolanique et a fait l'objet de nombreux travaux de recherche. L'utilisation de la balle de riz directement après le processus de décorticage pour la valoriser comme granulat



végétal dans un agrobéton isolant n'avait fait l'objet d'aucune étude approfondie jusqu'à présent. La démarche de cette étude consistera alors à élaborer un agromatériau innovant et local dont l'application est semblable à celle du béton de chanvre. Toutes les investigations seront donc menées à la fois sur le béton à base de balles de riz et sur le béton de chanvre qui sera pris comme référence.

Le travail de thèse présenté dans ce document s'articule de la façon suivante :

- Le premier chapitre concerne une analyse bibliographique où l'on présente en premier lieu le contexte environnemental de développement des agrobétons ainsi qu'un état de l'art sur la valorisation des ressources lignocellulosiques dans des matrices minérales. Les matières premières du béton de chanvre sont ensuite abordées en détail en accordant une importance particulière aux liants minéraux et notamment aux chaux de construction qui sont les plus utilisées pour ce type d'application. Les mécanismes de durcissement des liants en lien avec le développement de leur résistance mécanique sont présentés. Ce chapitre aborde ensuite les aspects de formulation du béton de chanvre ainsi que ses propriétés hygrothermiques et mécaniques. On trouvera aussi une revue bibliographique des procédés visant à améliorer les performances mécaniques des bétons de chanvre. Enfin il s'agira de collecter les données concernant la balle de riz et de présenter les très rares études publiées sur l'association de la balle de riz avec un liant minéral. Celles-ci se résument pour l'essentiel aux travaux de Julián Salas Serrano à l'institut Eduardo Torroja (Espagne) [1], [2].
- Le second chapitre est dédié à une présentation des matériaux utilisés (granulats végétaux et liant à base de chaux) et des techniques et méthodes expérimentales. Certains dispositifs d'essai sont détaillés de façon bien plus approfondie dans les articles. En effet, les chapitres suivants sont structurés de la même façon selon un préambule, un article de revue (ACL) et un bilan.
- Le troisième chapitre traite de certains aspects de caractérisation des granulats végétaux avant leur association avec un liant à base de 50% en masse de chaux aérienne (CL90-S) et de chaux hydraulique (NHL3.5). La conductivité thermique des bétons obtenus est mesurée pour différents ratios massiques liant/granat (L/G) et les caractéristiques mécaniques en compression sont étudiées pour un ratio L/G égal à 2. Cette formulation sera retenue pour les expériences menées dans les chapitres suivants qui vont notamment aborder l'influence de diverses conditions de cure (présence de CO<sub>2</sub>, humidité relative HR, température) sur les performances mécaniques des agrobétons.
- Le quatrième chapitre se focalise sur l'évolution des performances mécaniques au cours du temps (10 mois) en lien avec la cinétique de durcissement du liant (taux de carbonatation et développement des hydrates). Il s'agit de comparer une conservation des éprouvettes à 20°C et 50%HR avec une conservation en conditions extérieures. Ce chapitre aborde ensuite une cure en carbonatation accélérée des agrobétons (50% de CO<sub>2</sub> et 65%HR). Dans ce

dernier cas, le durcissement du liant et les propriétés mécaniques en compression sont caractérisés 2 mois après la fabrication des éprouvettes.

- Enfin, le cinquième et dernier chapitre se décline en deux parties distinctes correspondant à deux procédés différents visant à améliorer les performances mécaniques des agrobétons après 28 jours de cure.

Le premier procédé concerne l'effet d'une cure humide (95%HR) et d'une élévation de température (50°C) durant les premiers jours de cure sur le durcissement et les propriétés mécaniques des agrobétons. Cette partie est traitée à la fois sur le liant pur (via des mortiers à base de chaux) et sur les agrobétons.

Le second procédé vise à modifier la surface des granulats végétaux par un traitement à l'eau de chaux saturée préalablement à leur association avec le liant.

# Chapitre 1

## Analyse bibliographique

### I. Contexte environnemental

#### I. 1. Impact environnemental du secteur de la construction

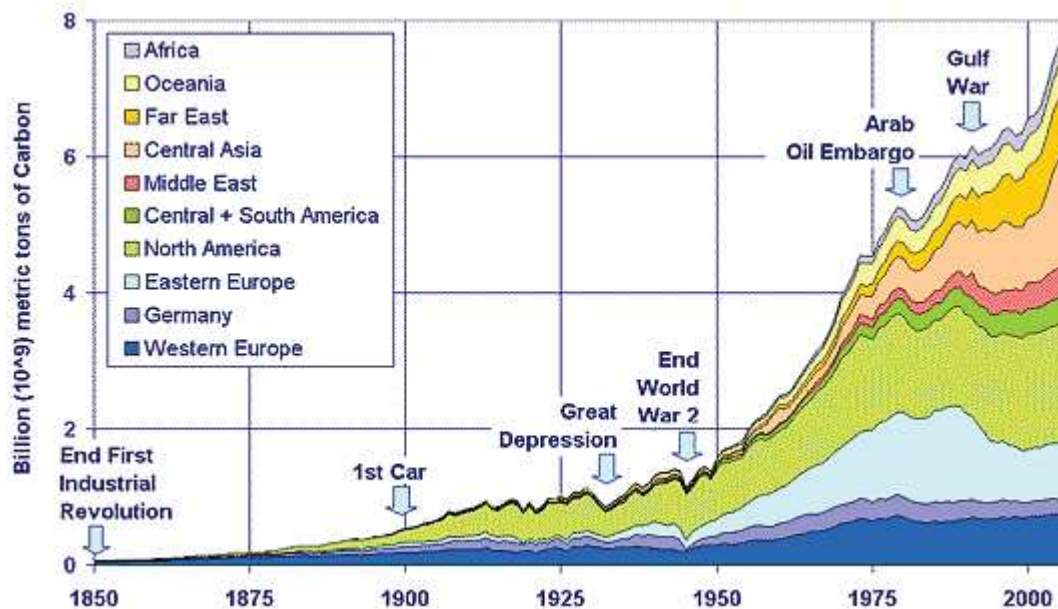
De nombreux scientifiques s'accordent à dire que les émissions de gaz à effet de serre (GES) générées par les activités humaines sont responsables du réchauffement climatique constaté depuis plusieurs décennies par les climatologues du GIEC<sup>1</sup>. La quantité de CO<sub>2</sub> rejetée dans l'atmosphère à l'échelle mondiale est en perpétuelle augmentation depuis la Révolution industrielle entraînant une augmentation considérable des émissions anthropiques (Figure 1-1). Ces émissions sont majoritairement dues à l'utilisation de combustibles fossiles (charbon, pétrole, gaz naturel) mais également à la décarbonatation du calcaire pour la fabrication du ciment ou encore à la déforestation [3].

En France, le secteur du bâtiment est responsable d'environ 25% des émissions de GES totales pour le fonctionnement du parc résidentiel et tertiaire. Il fait figure de mauvais élève en ce qui concerne les consommations d'énergie finale avec une part de 43% loin devant le secteur des transports (31%) et de l'industrie manufacturière (20%) [4]. Les émissions de CO<sub>2</sub> générées par le bâtiment proviennent en partie de la combustion et de la transformation d'énergie fossile (chauffage, électricité spécifique, eau chaude sanitaire, cuisson). Toutefois, l'évaluation de l'impact environnemental du bâtiment ne devrait pas seulement prendre en

---

<sup>1</sup> Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat

compte sa période de fonctionnement mais également sa phase de construction ou encore sa réhabilitation et sa destruction [5]. Les matériaux de construction utilisés vont notamment jouer un rôle important tant sur la consommation d'énergie durant l'utilisation du bâtiment (par leurs performances thermiques) que sur les émissions de CO<sub>2</sub> (grâce à l'impact carbone des matières premières utilisées pour leur fabrication).



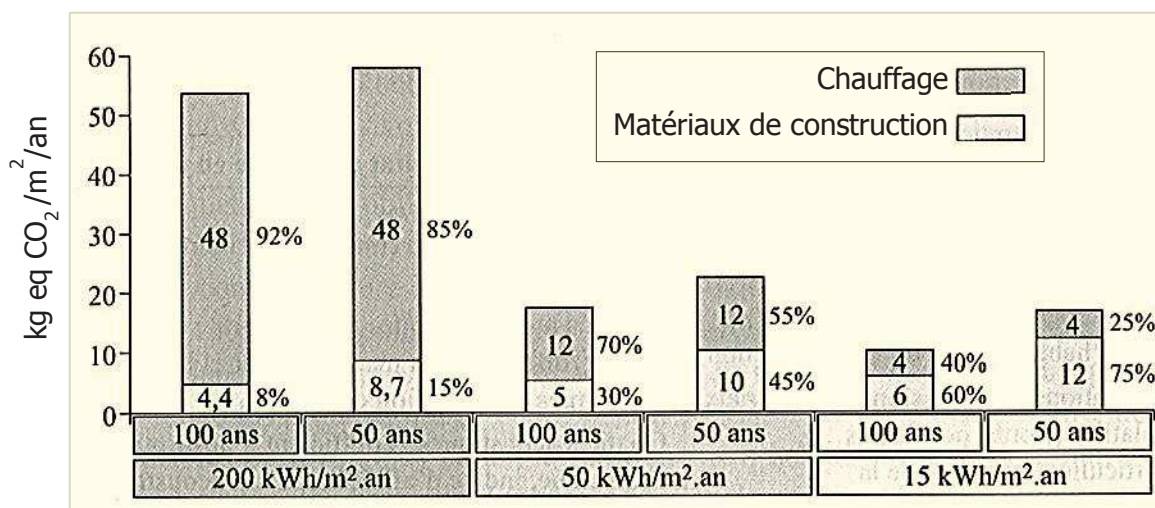
**Figure 1-1.** Évolution par région des émissions de CO<sub>2</sub> annuelles provenant de la combustion des énergies fossiles et de la production du ciment de 1850 à 2006 [3]

En France, la législation qui encadre la consommation énergétique dans le secteur du bâtiment est la Réglementation Thermique (RT). La première a été introduite en 1974 suite au premier choc pétrolier dans l'objectif de limiter les déperditions thermiques importantes dans les bâtiments d'habitation. Le niveau d'exigence de cette réglementation est de plus en plus élevé et le travail mené sur l'orientation énergétique de la France durant ces dernières années s'est traduit par les lois du Grenelle de l'environnement I et II (2009 – 2010). Elles visent notamment à diminuer de 38% la consommation énergétique du parc résidentiel et tertiaire existant d'ici à 2020 et à diviser par 4 les émissions de GES d'ici à 2050 [6].

Près de la moitié du parc bâti a été construit avant 1970 c'est-à-dire sans aucun dispositif d'isolation thermique et le flux de constructions neuves est très faible. L'effort de réduction des consommations énergétiques par la rénovation du parc existant est donc primordial. La loi Grenelle a prévu une réhabilitation thermique de 400 000 logements par an à partir de 2013 [4]. La réglementation thermique RT2012 qui est actuellement en vigueur s'applique aux bâtiments neufs des secteurs résidentiel et tertiaire. Elle impose une consommation

énergétique inférieure à 50 kWh/m<sup>2</sup>/an (valeur moyenne du label BBC<sup>2</sup>) [6] alors que la consommation moyenne dans le résidentiel existant est actuellement de 330 kWh/m<sup>2</sup>/an [4]. Cet écart considérable montre bien que le seul traitement des bâtiments neufs ne permettra pas d'atteindre les objectifs fixés par la loi Grenelle. La RT2012 porte essentiellement sur l'évolution technologique de la conception des bâtiments neufs dans l'objectif de réduire les émissions de GES et de diminuer les consommations liées au chauffage et à la climatisation. L'accent est mis sur l'étanchéité à l'air et le confort d'été [6]. L'évolution des exigences réglementaires prend le chemin des bâtiments neufs à énergie positive à l'horizon 2020.

L'impact environnemental des matériaux de construction n'est pas pris en compte par les législations européenne et française car les mesures prises portent essentiellement sur la période de fonctionnement des bâtiments. Ce constat est tout à fait regrettable car la réduction progressive des consommations énergétiques liées à la conception des bâtiments implique que la part des matériaux de construction dans l'impact environnemental global soit de plus en plus importante [4]. En effet, les constructions étant de mieux en mieux isolées, la répartition des impacts carbone entre le chauffage et les matériaux de construction est en mutation constante. Ainsi, la part relative des matériaux de construction passe de 15% à 75% lorsque la consommation de chauffage passe de 200 kWh/m<sup>2</sup>/an à 15 kWh/m<sup>2</sup>/an (correspondant à la consommation énergétique visée par la RT2012) pour un bâtiment d'une durée de vie égale à 50 ans (Figure 1-2). Le développement de matériaux de construction alternatifs à faible impact environnemental est donc une priorité pour réduire les émissions de GES sur l'ensemble du cycle de vie des bâtiments [4].



**Figure 1-2.** Répartition des consommations énergétiques entre le chauffage et les matériaux de construction des bâtiments en fonction de leurs performances énergétiques et de leur durée de vie [4]

<sup>2</sup> Bâtiment Basse Consommation

## I. 2. Vers l'utilisation des écomatériaux

Qu'il s'agisse de la rénovation thermique des bâtiments ou de constructions neuves, une grande vigilance s'impose vis-à-vis du choix des isolants et des matériaux de construction utilisés d'une façon générale.

Au-delà des caractéristiques techniques habituelles qui sont requises, les écomatériaux se doivent de répondre à des exigences de construction durable qui s'articulent autour du confort hygrothermique, du respect de l'environnement et de la qualité sanitaire. La plupart des critères sont reportés dans la Figure 1-3.

| Critères techniques habituels  | Qualité environnementale  |
|--|---|
| <ul style="list-style-type: none"><li>• Performances mécaniques</li><li>• Durabilité</li><li>• Résistance au feu</li></ul> | <ul style="list-style-type: none"><li>• Matières premières renouvelables et recyclables</li><li>• Énergie grise (énergie consommée de la conception au recyclage du matériau)</li><li>• Émissions de GES</li><li>• Respect de l'environnement lors de l'exploitation des matières premières</li></ul> |
| Qualité sanitaire  | Confort de l'habitat  |
| Émissions de composés organiques volatiles (formaldéhyde, etc.)  | <ul style="list-style-type: none"><li>• Conductivité thermique, inertie thermique</li><li>• Gestion de la vapeur d'eau</li><li>• Qualités acoustiques</li></ul>   |

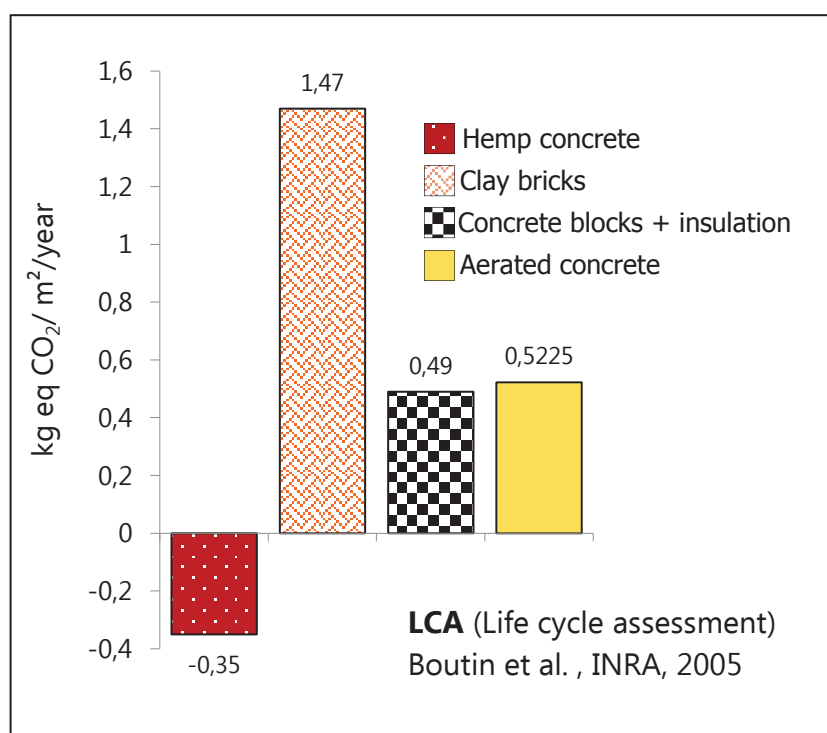
**Figure 1-3.** Critères pouvant définir un écomatériau de construction [6]

L'approche ACV (Analyse de Cycle de Vie) permet d'analyser l'impact environnemental d'un matériau de construction sur l'ensemble de sa durée de vie. Elle prend en compte l'énergie nécessaire à l'extraction des matières premières et à leur transformation, le transport des matériaux, la gestion de fin de vie et l'épuisement des ressources [7]. Ces critères définissent la qualité environnementale d'un matériau (Figure 1-3) et ont tendance à être négligés. Pourtant, l'énergie grise (ou énergie incorporée) des matériaux de construction représente près de la moitié de la consommation énergétique globale d'un bâtiment ayant une consommation de 80 kWh/m<sup>2</sup>/an [7].

Le terme « écomatériau » est de plus en plus employé mais n'est pas toujours approprié. Certains matériaux de construction comme le béton cellulaire ou la brique monomur sont parfois qualifiés de matériaux de construction « verts » en raison de leur pouvoir d'isolation supérieur aux blocs bétons conventionnels. Il s'agit pourtant de matériaux fabriqués suivant un mode industriel et une énergie incorporée particulièrement élevée [8]. C'est notamment le cas de la brique de terre cuite, qui certes est caractérisée par de bonnes performances thermiques mais qui est particulièrement énergivore lors de sa fabrication comme cela est

clairement démontré par l'ACV réalisée par Boutin et al. [9] sur différents matériaux de construction (Figure 1-4). D'après cette étude, l'impact CO<sub>2</sub> de la brique monomur et du béton cellulaire est plus élevé que celui d'un système associant blocs béton et laine minérale, qui n'est pourtant pas un exemple à suivre en matière environnementale. En effet, les laines minérales (verre, roche) et isolants synthétiques, qui représentent 98% du marché des matériaux d'isolation, sont des matériaux performants sur le plan thermique mais puisent l'essentiel de leurs matières premières dans des ressources non renouvelables. La laine de verre demande une forte dépense énergétique pour la fusion du verre et le polystyrène est issu de ressources hydrocarbures non renouvelables [8].

En revanche, l'étude de Boutin et al. met bien en évidence l'effet « puits de carbone » des bétons de chanvre (Figure 1-4). Ces écomatériaux associent un granulats végétal avec un liant minéral généralement à base de chaux.



**Figure 1-4.** Résultats d'une ACV sur différents matériaux de constructions conventionnels et sur une formulation de béton de chanvre [9]

Idéalement, les écomatériaux sont élaborés à partir de ressources renouvelables et si possible locales. Ils permettent, grâce à leurs propriétés physiques, de garantir le confort thermique intérieur tout en consommant le moins d'énergie possible (réduction des besoins en chauffage et climatisation) [4]. Il ne s'agit en aucun cas de s'affranchir de l'utilisation du béton ordinaire qui reste bien évidemment indispensable pour bon nombre d'applications, notamment lorsqu'il est nécessaire de garantir des performances mécaniques élevées pour la structure porteuse. Néanmoins, les matériaux à isolation répartie (tels que la brique de terre



cuite ou le béton cellulaire) et les isolants d'origine minérale (laines de verre) ou pétrolière (polystyrène) largement utilisés pour l'enveloppe du bâtiment pourraient avantageusement être remplacés par des écomatériaux à faible impact environnemental garantissant des performances hygrothermiques équivalentes voire supérieures [4].

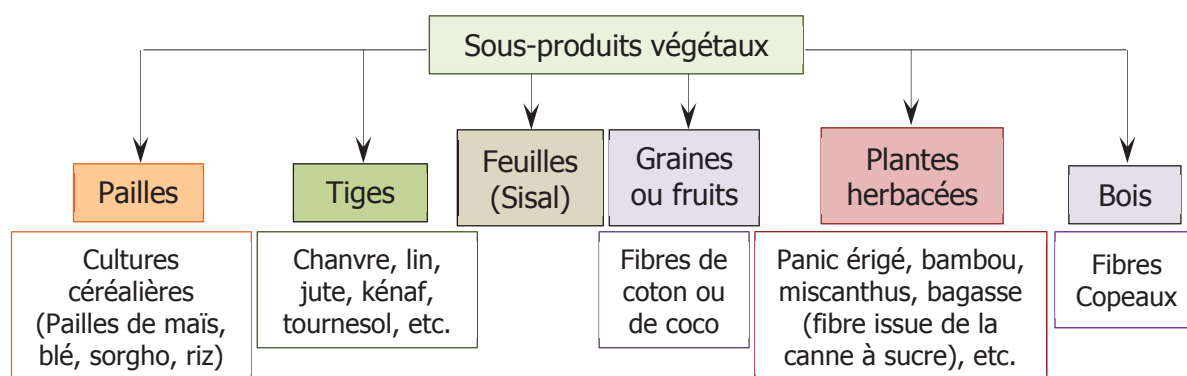
L'établissement de liens étroits entre l'industrie du bâtiment et l'agriculture dans l'objectif de développer des écomatériaux de construction à base de ressources végétales locales est donc tout à fait pertinent pour répondre en particulier aux besoins de rénovation énergétique du bâti.

## II. Les ressources lignocellulosiques

### II. 1. Valorisation dans les matériaux de construction

De nombreuses matières lignocellulosiques ont été utilisées pour être incorporées à des liants minéraux. Cependant, il est important de faire une distinction entre les fibres végétales utilisées comme renforts mécaniques de composites cimentaires et les granulats végétaux plutôt valorisés pour la confection de bétons bio-sourcés légers à vocation isolante, nommés « agrobétons ». Nozahic [10] définit ces matériaux comme l'association de granulats issus de végétaux lignocellulosiques provenant de l'agriculture, majoritaires en volume, avec un liant minéral. Un mélange qui inclurait des granulats lignocellulosiques en très faible volume ou des fibres végétales de renfort n'entre donc pas dans la définition.

Les fibres et les granulats d'origine végétale proviennent de cultures lignocellulosiques différentes. Une grande majorité d'entre eux provient de la tige ou de la paille. On parle de paille pour les plantes céréalières graminées (la paille de riz, par exemple). Certains résidus lignocellulosiques sont également issus de feuilles ou de plantes herbacées (Figure 1-5) [11].



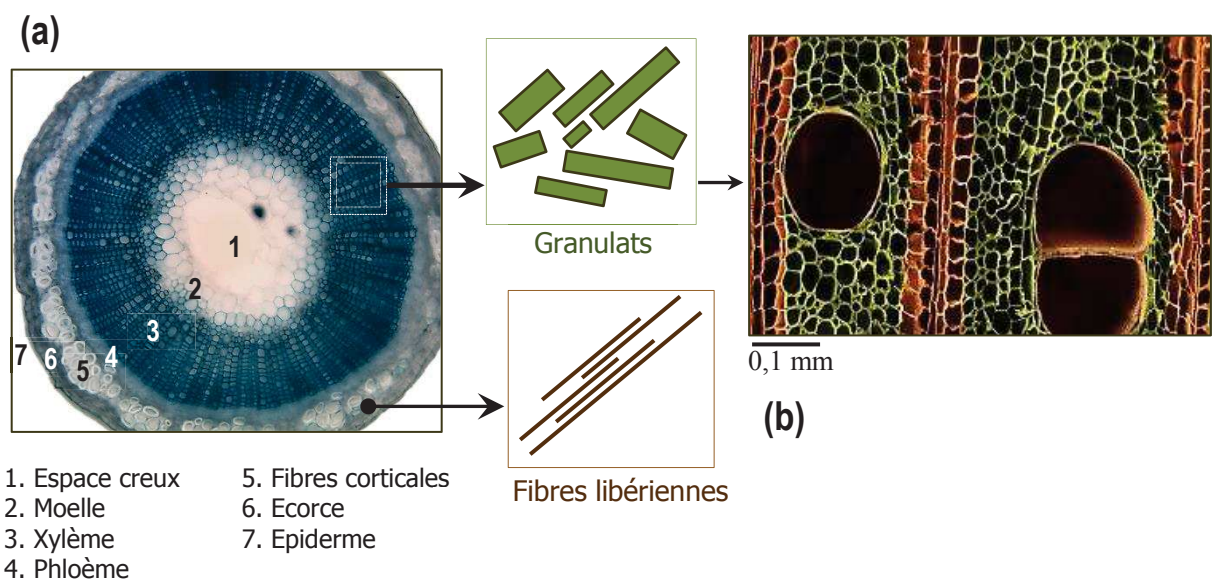
**Figure 1-5.** Types de sous-produits végétaux suivant les cultures lignocellulosiques [11]



La tige végétale est toujours structurée de façon similaire en zones concentriques de l'extérieur vers l'intérieur : l'épiderme et l'écorce externe, le liber ou phloème secondaire dans lequel se trouve les fibres corticales, le xylème qui est la partie boisée lignifiée, la moelle et enfin le lumen (âme creuse) [6], [12] (Figure 1-6a).

Les fibres végétales (libériennes) proviennent de la partie périphérique de la tige (chanvre, lin, juste, ramie, kénafr, etc.) [4].

La désolidarisation de la partie ligneuse de la fibre libérienne s'effectue par différentes opérations mécaniques. Le broyage de la tige une fois les fibres corticales séparées permet d'obtenir un granulat végétal dont la structure microscopique est très alvéolaire. Cette dernière est liée à celle du xylème ligneux constitué d'importants capillaires longitudinaux qui assurent le transport de la sève dans les plantes vasculaires. Le xylème est constitué de fibres aux parois très épaisses qui jouent un rôle de support structural, de cellules parenchymateuses et surtout d'éléments trachéiformes, les vaisseaux et les trachéides. Ces tubes continus sont généralement parsemés de ponctuations et leur diamètre peut varier de 10  $\mu\text{m}$  à 500  $\mu\text{m}$  (Figure 1-6.b).



**Figure 1-6.** (a) Coupe transversale d'une tige de lin (b) Tissus conducteurs de vaisseaux et trachéides du xylème des plantes ligneuses [6]

## II. 1. 1. Fibres végétales

Les fibres végétales sont de plus en plus utilisées comme alternative aux fibres de verre ou de carbone pour la fabrication de matériaux composites dans l'industrie du bâtiment. Elles assurent alors un rôle de renforcement mécanique du composite et sont généralement appréciées pour leur résistance en traction. Cette caractéristique est liée à leur composition

chimique, leur structure ou encore leur facteur de forme. La résistance en traction des fibres de lin peut par exemple atteindre plus de 1000 MPa avec un module d'élasticité de l'ordre de 30 GPa [13]. Les propriétés mécaniques des fibres naturelles ne sont donc pas si éloignées de celles de la plupart des fibres synthétiques. Les fibres végétales sont d'ores et déjà largement utilisées à l'échelle industrielle dans les composites à matrice polymère (par exemple dans l'industrie automobile). Leur utilisation pour des applications structurelles dans les matériaux cimentaires est en revanche nettement moins avancée. Cependant, on note un nombre croissant de travaux de recherche dans ce domaine, en particulier le renforcement de composites à base de ciment, de chaux ou de liants pouzzolaniques par des fibres de chanvre [4], [13]–[19] parmi lesquels on peut citer les travaux de Sedan [16], Le Troëdec et al. [17]–[19] ou encore Magniont [4]. L'utilisation des fibres végétales comme agents de renforts dans des composites à matrice minérale permet de diminuer la densité du matériau tout en améliorant ses performances mécaniques mais elle peut jouer aussi un rôle sur les performances thermiques et acoustiques [19]. Au-delà des fibres de chanvre les plus étudiées, les composites cimentaires renforcés par des fibres de lin ou de bois font également l'objet de nombreux travaux [14], [20]–[24] (Tableau 1-1).

## II. 1. 2. Granulats végétaux

Nous avons vu que les granulats végétaux correspondent à la partie boisée de la tige. Ils se présentent généralement sous la forme de copeaux et ont une visée différente de celle des fibres végétales. Ils n'apportent pas de résistance mécanique mais permettent de créer un réseau poreux interconnecté conséquent au sein du matériau [25]. Leur granulométrie (millimétrique à centimétrique) varie en fonction de la plante défibrée, de sa qualité ou encore du processus de broyage utilisé [12]. Associés à un liant minéral, les granulats d'origine végétale permettent de confectionner des bétons légers isolants caractérisés par de très bonnes performances hygrothermiques et acoustiques [10].

Les agrobétons à base de chènevotte (correspondant à la partie centrale de la tige du chanvre) connaissent un essor grandissant. Le nombre d'études portant sur ces bétons communément appelés « Bétons de Chanvre » en témoigne. On peut notamment citer les travaux de thèse de Cerezo [26], Nguyen [27], Evrard [28], Tran Le [29], Nozahic [10] ou encore Chamoin [5] (Tableau 1-1).

D'autres granulats d'origine végétale (tige de tournesol [10], copeaux de bois [30], [31]) ont été associés à des liants minéraux pour diversifier les ressources lignocellulosiques ou développer des « agrobétons locaux ». Les propriétés thermiques et mécaniques obtenues sur des agrobétons à base de granulats de tournesol sont comparées avec celles des bétons de chanvre dans les travaux de Nozahic [10].

**Tableau 1-1.** Valorisation de ressources lignocellulosiques dans des matrices minérales

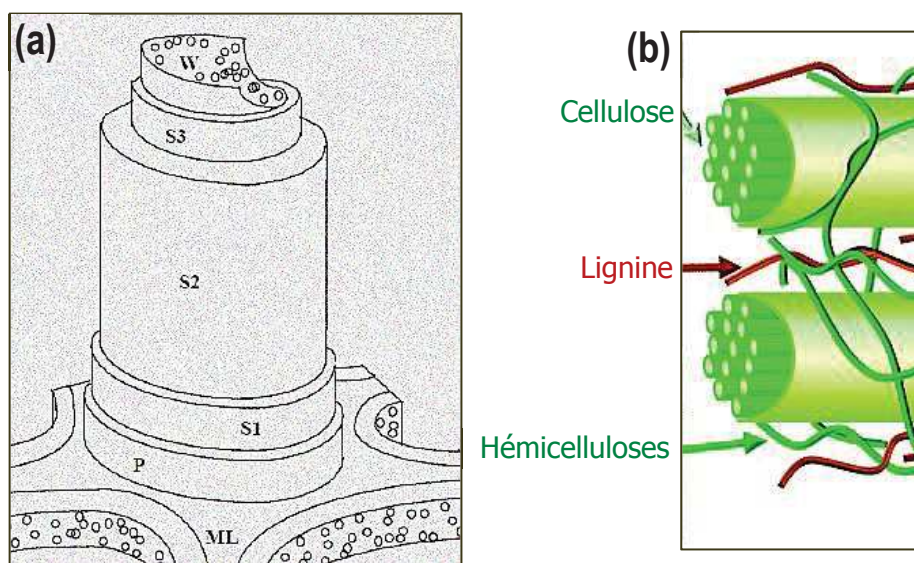
| Plantes    | Matière valorisée    |                                       |
|------------|----------------------|---------------------------------------|
|            | Fibres               | Granulats                             |
| Chanvre    | [4], [13], [16]–[19] | Chènevotte [10], [25]–[29], [32]–[38] |
| Lin        | [4], [14], [20]      | Anas de lin [39]–[41]                 |
| Bois       | [21]–[24]            | Sciures, copeaux [30], [31], [42]     |
| Tournesol  | -                    | Tige entière [43]–[45]                |
| Miscanthus | -                    | Paille [46]                           |

## II. 2. Organisation structurale à l'échelle cellulaire

L'organisation macroscopique d'une tige a été détaillée dans le paragraphe précédent (Figure 1-6). Les végétaux lignocellulosiques (fibres comme granulats) peuvent également être décrits à l'échelle cellulaire (i.e. de la paroi végétale).

Les ressources lignocellulosiques sont constituées majoritairement de cellulose et de lignine. Ces deux composés représentent environ 70% de la biomasse végétale [10].

La structure cellulaire des végétaux lignocellulosiques est illustrée sur la Figure 1-7a.



**Figure 1-7.** (a) Structure de la paroi cellulaire des végétaux lignocellulosiques [11] (b) Agencement des composants dans les parois lignocellulosiques [47]

La lamelle mitoyenne (notée ML en Figure 1-7a) est riche en pectines et joue un rôle de colle entre les cellules végétales. La paroi primaire (P), située à l'intérieur, est constituée de microfibrilles de cellulose organisées de façon parallèle. Ces chaînes de cellulose cristallisée baignent dans une matrice amorphe d'hémicelluloses (Figure 1-7b). La paroi secondaire est structurée en trois couches ( $S_1$ ,  $S_2$  et  $S_3$ ). Elle est caractérisée par les mêmes constituants

que la paroi primaire mais contient en plus de la lignine. La couche la plus interne (W) est appelée couche verruqueuse [10], [11], [16], [47].

Les sous-produits issus de végétaux lignocellulosiques ont tous les mêmes constituants (cellulose, hémicelluloses, lignine, cires, graisses) mais dans des proportions variables.

- La cellulose est une chaîne polymère linéaire de glucoses. C'est le constituant principal de la paroi végétale. Compte tenu de son organisation majoritairement cristalline, la cellulose est insoluble dans l'eau et même dans la plupart des solvants. En revanche, la cellulose est très hydrophile [10], [11], [16].

- Les hémicelluloses sont des polysaccharides à chaînes plus courtes que celles de la cellulose et à structure amorphe. Contrairement à la cellulose qui ne contient qu'un seul sucre, les hémicelluloses sont composées de plusieurs sucres neutres (glucose, galactose, mannose, xylose, arabinose) et d'acides uroniques. Les hémicelluloses sont solubles dans l'eau et sont très facilement extraites de la paroi des cellules végétales par des solutions alcalines. Elles sont également hydrophiles [10], [11], [16].

- La lignine est un polymère complexe avec des chaînes aliphatiques et aromatiques. Elle est présente en grande quantité dans la partie boisée lignocellulosique du xylème des tiges végétales et participe à la cohésion des fibres. Elle apporte rigidité et perméabilité. En effet, la lignine est très hydrophobe contrairement à la cellulose et aux hémicelluloses. La nature de la lignine dans les différentes parties d'une même plante peut être différente [10], [11].

- Les pectines sont des polysaccharides acides présents dans la lamelle mitoyenne. Les molécules de pectine possèdent des fonctions carboxyles qui leur donnent une grande capacité à échanger les ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) [16].

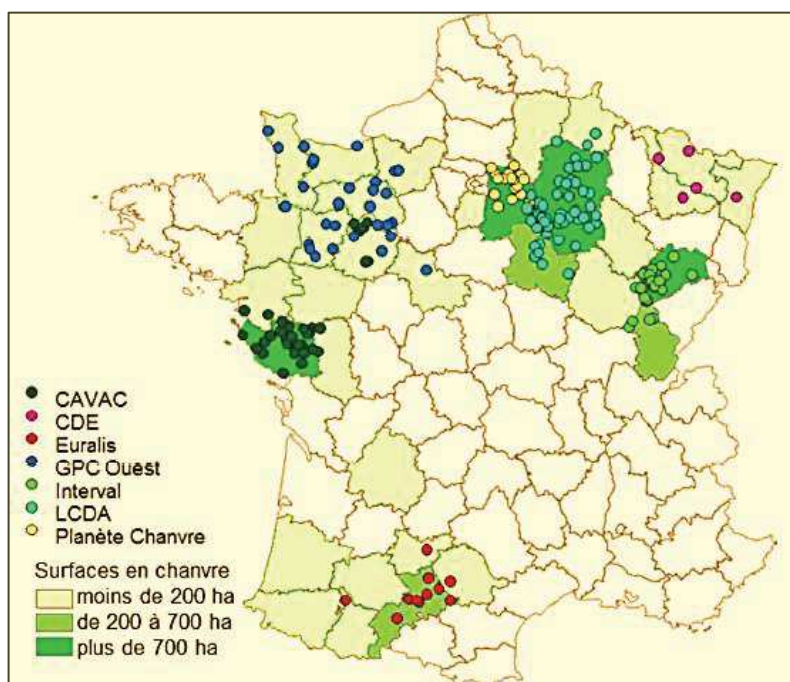
- Les cires se composent de différents types d'alcools insolubles dans l'eau et de plusieurs acides. Elles sont extraites à l'aide de solutions organiques et sont hydrophobes [48].

### III. Matières premières du béton de chanvre

#### III. 1. Le chanvre

Le chanvre (« Cannabis Sativa ») est une plante annuelle dont la hauteur varie de 1 à 3 mètres (Figure 1-9a). Cette espèce est dédiée à la culture du chanvre industriel et se trouve en Asie Centrale et en Europe. La croissance du chanvre dure environ 4 mois [16], [27]. Lorsque la plante est mature, la tige est fauchée puis conservée sur place quelques semaines (rouissage). Lorsque le taux d'humidité de la tige est proche de 15%, celle-ci est récoltée et conduite vers un défibreux mécanique qui permet de séparer la matière ligneuse de la fibre libérienne.

La surface d'exploitation du chanvre industriel en France était de 11 000 ha en 2013 suivant le CETIOM<sup>3</sup> [49] (Figure 1-8).



**Figure 1-8.** Surfaces de culture du chanvre [49]

La production française s'organise autour d'industriels de première transformation sur plusieurs bassins de production situés principalement en Champagne-Ardenne (Aube), Basse-Normandie et Pays-de-la-Loire (Vendée) ainsi qu'en Midi-Pyrénées (Haute-Garonne).

La tige du chanvre (Figure 1-9b) est valorisée dans des domaines d'application différents. Une coupe transversale en microscopie optique après coloration au carmino-vert de Mirande est représentée en Figure 1-9c [16]. Elle permet de distinguer les tissus riches en cellulose (zone rouge) de ceux fortement lignifiés (en vert) [16]:

- L'épiderme est constitué d'une couche de cellules à paroi cellulosique,
- Le cortex contient les fibres corticales périphloémiennes regroupées en amas (faisceaux),
- Le bois (d'où provient la chènevotte) est constitué de cellules de parenchyme, de fibres et de vaisseaux conducteurs (xylème décrit en Figure 1-6b),
- La moelle est constituée de parenchyme médullaire.

L'épiderme, le cortex et la moelle sont plutôt de nature cellulosique tandis que le bois est un tissu fortement lignifié.

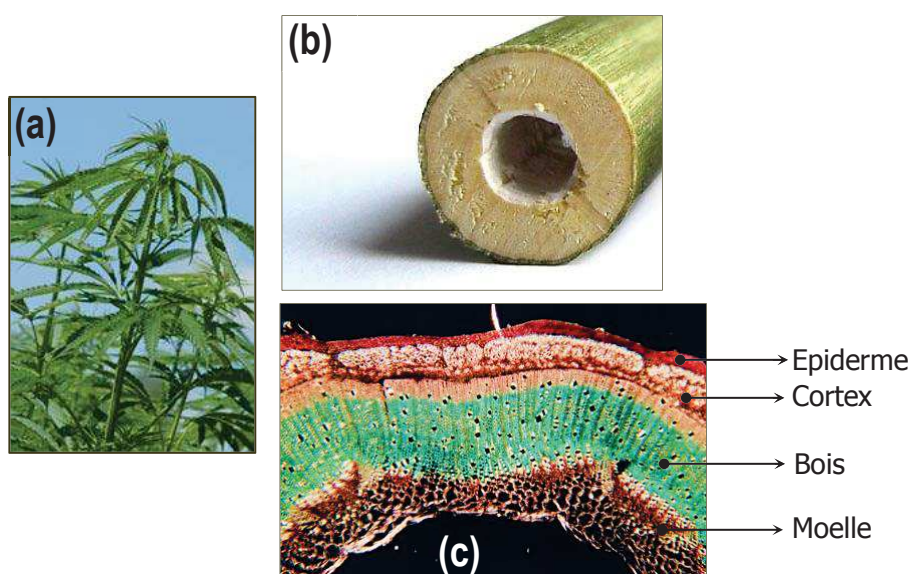
Le cortex périphérique représente environ 35% du poids sec de la tige. Les fibres qui en sont issues sont majoritairement utilisées pour la fabrication de laine isolante dont la conductivité thermique est comparable à celle des laines minérales (laine de verre ou laine

<sup>3</sup> Centre technique interprofessionnel des oléagineux et du chanvre



de roche). En effet, la conductivité thermique des panneaux de laine de chanvre varie de 0,04 à 0,06 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> [27]. Les fibres servent également à réaliser des renforts dans des matériaux composites plastiques, de la pâte à papier ou encore du textile [50].

Le bois représente environ 50% du poids sec des tiges. Par conséquent, la production de chènevotte se caractérise par un rendement de 3 à 3,5 T/ha soit environ 35 000 T/an [49]. L'utilisation de la chènevotte en France comme granulat pour la confection de bétons légers isolants (les Bétons de Chanvre) a été initiée au tout début des années 1990 [27].



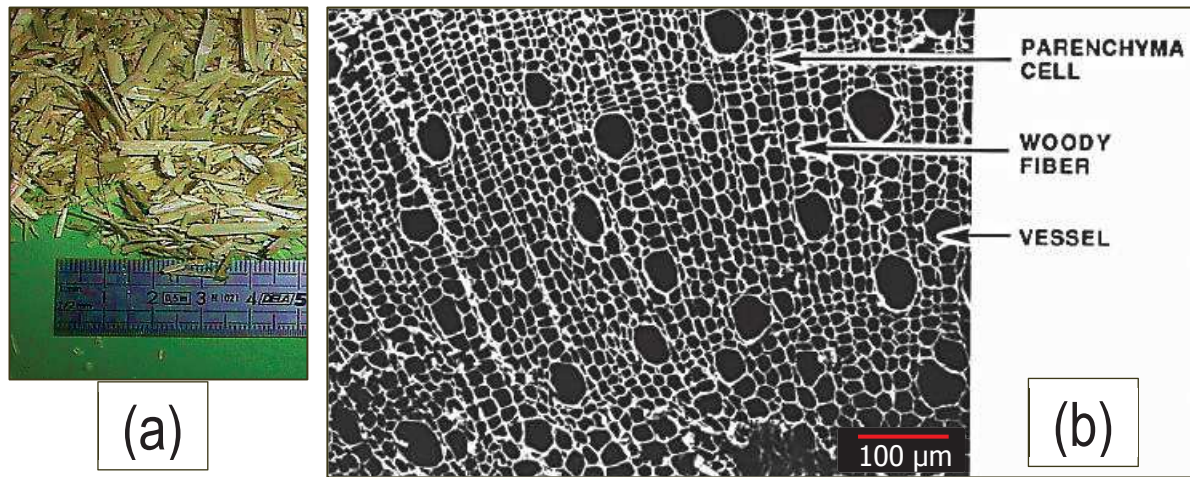
**Figure 1-9.** (a) Plant de chanvre (b) Photographie d'une tige de chanvre (c) Micrographie d'une coupe transversale de la tige du chanvre colorée au carmino-vert de Mirande [16]

## III. 2. La chènevotte

Le granulat de chènevotte, qui correspond à la partie boisée de la tige de chanvre, a été caractérisé dans de nombreuses études traitant des bétons de chanvre. Les résultats les plus importants sont synthétisés dans ce paragraphe.

### III. 2. 1. Microstructure

L'observation d'une particule de chènevotte en coupe par microscopie électronique à balayage (MEB) confirme sa très grande porosité (Figure 1-10b). Elle est constituée de capillaires formés par les parois cellulaires et orientés longitudinalement. L'épaisseur des parois est de l'ordre de 1 µm. La section des vaisseaux est variable et comprise entre 10 et 60 µm [50]. Cette structure explique les caractéristiques essentielles de la chènevotte telles que sa forte capacité d'absorption d'eau et sa très faible masse volumique.



**Figure 1-10.** (a) Granulat de chènevotte (b) Coupe transversale d'une particule de chènevotte au MEB [50]

### III. 2. 2. Masses volumiques et porosités

Les masses volumiques d'un granulat de chènevotte pure provenant de la Chanvrière de l'Aube ont été déterminées par Nguyen [27] et sont reportées dans le Tableau 1-2.

**Tableau 1-2.** Masses volumiques et porosités du granulat de chènevotte [27]

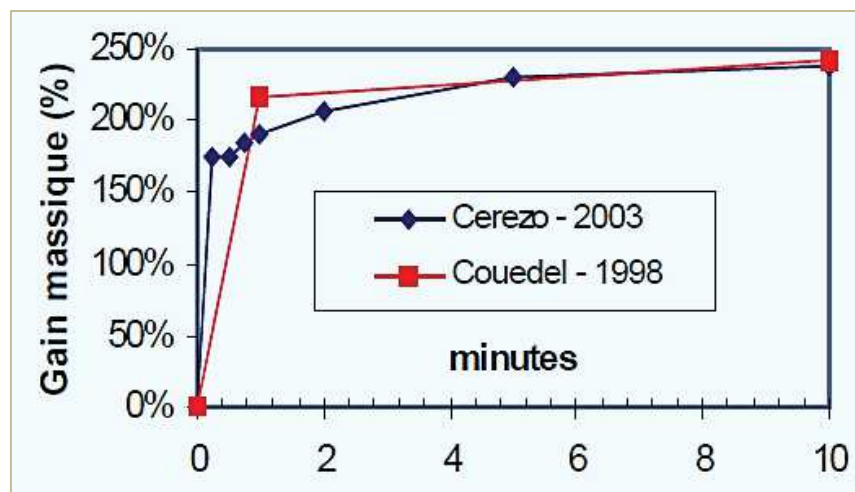
|   |      |
|---|------|
| $\rho_B$ : Masse volumique apparente en vrac à l'état sec ( $\text{kg.m}^{-3}$ )  | 103  |
| $\rho_T$ : Masse volumique apparente (vraie) des particules sèches ( $\text{kg.m}^{-3}$ )                                     | 256  |
| $\rho_S$ : Masse volumique absolue <sup>a</sup> ( $\text{kg.m}^{-3}$ )  | 1465 |
| Porosité totale : $\eta_{\text{Tot-Gr}} = 1 - \rho_B/\rho_S$  | 93%  |
| Porosité inter-granulaire : $\eta_{\text{Inter}} = 1 - \rho_B/\rho_T$   | 60%  |
| Porosité intra-granulaire des particules isolées : $\eta_{\text{Intra-P}} = 1 - \rho_T/\rho_S$                                | 82%  |
| Porosité intra-granulaire par rapport au mélange : $\eta_{\text{Intra/Tot}} = \eta_{\text{intra-P}}(1 - \eta_{\text{inter}})$ | 33%  |

<sup>a</sup>Masse volumique de la phase solide

La masse volumique en vrac du granulat de chènevotte est de l'ordre de  $100 \text{ kg.m}^{-3}$ . La masse volumique apparente d'une particule a été mesurée à partir d'une section de tige de chanvre défibrée et la masse volumique absolue par pycnométrie. Ces valeurs mettent en évidence la forte porosité intra-particule qui est considérée comme majoritairement ouverte [26], [27]. La porosité totale de l'assemblage granulaire en vrac s'élève à plus de 90% selon Nguyen [27].

### III. 2. 3. Capacité d'absorption en eau

Les résultats des essais d'absorption en eau menés par Cerezo [26] et Couedel [51] sur des granulats de chènevotte sont reportés en Figure 1-11.



**Figure 1-11.** Eau absorbée par les granulats de chènevotte initialement secs en fonction du temps [26], [51]

La cinétique d'absorption d'eau se montre très rapide durant les premières minutes. Le pourcentage d'absorption en eau après 5 minutes d'immersion a été déterminé par plusieurs auteurs (Tableau 1-3). Il se situe entre 200% et 300% [25]–[27], [43]. Au-delà de 2 à 5 minutes, la cinétique d'absorption chute très fortement. Toutefois, le granulat de chènevotte peut absorber jusqu'à 4 fois sa masse en eau (400%) avant d'arriver à saturation complète après 48 heures d'immersion. Ce constat laisse présager une compétition importante pour la mobilisation de l'eau entre la chènevotte et l'hydratation du liant minéral. Par conséquent, la gestion des transferts hydriques entre liant minéral et granulat végétal est un paramètre qui influence largement les performances mécaniques finales des bétons de chanvre.

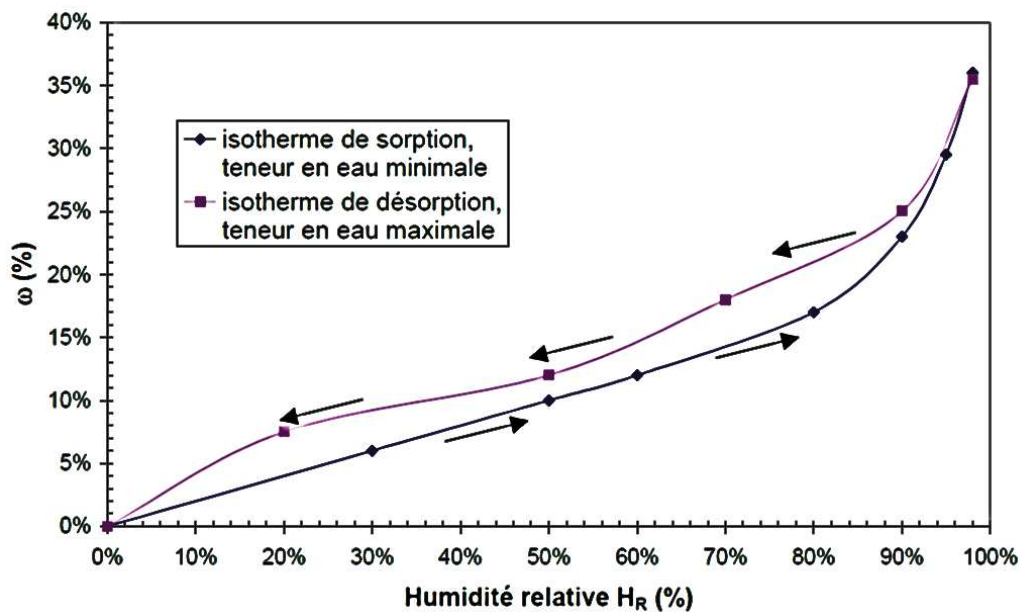
**Tableau 1-3.** Taux d'absorption en eau de différents granulats de chènevotte après 5 minutes d'immersion (selon les auteurs)

|                             | Taux d'absorption (%) |
|-----------------------------|-----------------------|
| Nguyen [27]                 | 260                   |
| Nozahic et al. [43]         | 280                   |
| Cerezo [26] et Couedel [51] | 225                   |
| Arnaud et Gourlay [25]      | 225                   |



### III. 2. 4. Sensibilité à la vapeur d'eau

L'utilisation de granulats à forte porosité amène à considérer leur comportement vis-à-vis de la vapeur d'eau présente dans l'air en quantité variable selon l'hygrométrie du milieu extérieur. Les isothermes de sorption et désorption de la vapeur d'eau de la chènevotte à une température constante de 20°C sont représentées sur la Figure 1-12 [26]. La teneur en eau augmente de façon importante avec l'humidité relative environnante, ce qui traduit le fort pouvoir hygroscopique de la chènevotte. Lorsque les échantillons sont conservés à 20°C et 50%HR, la teneur en eau est de l'ordre de 10%. Cette dernière peut atteindre plus de 35% en ambiance saturée.



**Figure 1-12.** Isothermes de sorption/désorption de particules de chènevotte à 20°C [26]

### III. 2. 5. Conductivité thermique

Des mesures de conductivité thermique ont été réalisées par Cerezo [26] sur un granulat de chènevotte en vrac à l'état sec. Les valeurs obtenues se situent entre  $0,048 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $0,058 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Elles dépendent de la porosité totale de l'empilement granulaire. Nozahic [10] a mesuré la conductivité thermique d'un granulat de chènevotte conservé dans une ambiance à 20°C et 35%HR. Il a obtenu une conductivité thermique de  $0,072 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Il a comparé cette valeur à celle obtenue après étuvage à 60°C pendant 48 heures (état sec) égale à  $0,057 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Ce résultat permet de mettre en évidence l'influence de la présence d'eau liquide dans les pores sur la conductivité thermique de matériaux hygroscopiques. Cette tendance sera d'autant plus importante à l'échelle de l'agrobéton.

On note que la conductivité thermique du granulat de chènevotte est à peine plus élevée

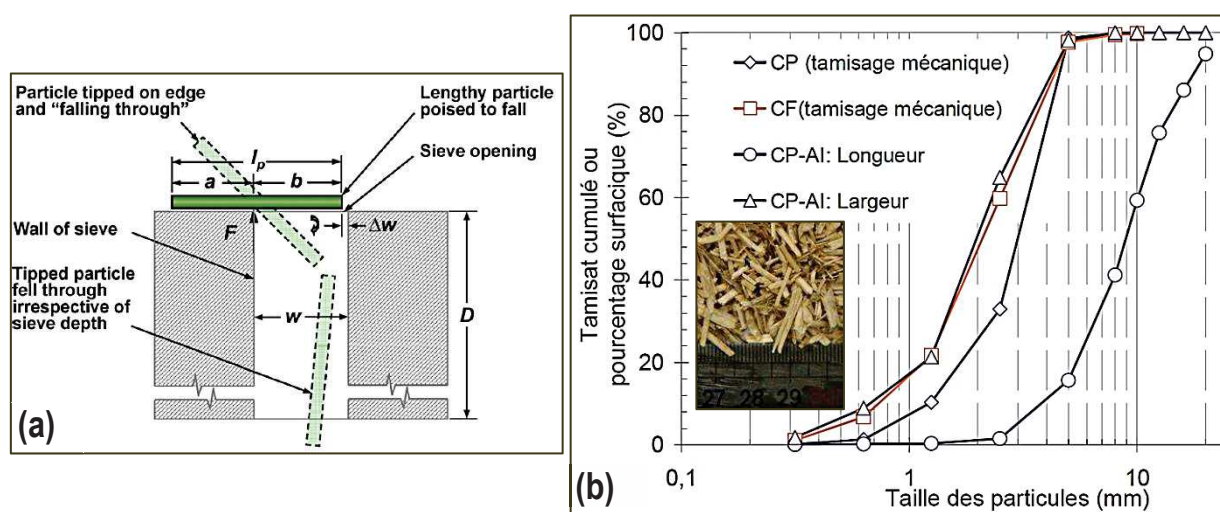
que celle de matériaux isolants comme les laines minérales qui est généralement comprise entre 0,03 et 0,045 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> [45].

### III. 2. 6. Granulométrie

Le tamisage mécanique est classiquement employé pour l'étude des granulats minéraux. Les granulats d'origine végétale présentent toutefois des caractéristiques bien différentes. Ils sont nettement plus allongés, très poreux, déformables et leur masse volumique apparente est très faible. Les tamis à maille carrée présentent un intérêt limité puisqu'ils ne tiennent pas compte de l'élongation des particules végétales. L'analyse granulométrique par tamisage assume que toutes les particules sont de forme quasi-sphérique et passent à travers une ouverture carrée lorsque leur diamètre est inférieur au côté du carré. Cette méthode est donc très peu adaptée pour les particules végétales (Figure 1-13a) [10], [52], [53].

De plus, la chènevotte étant issue d'un processus de broyage de la tige du chanvre, il en résulte des particules de formes assez irrégulières et anguleuses dues à la microstructure de la plante orientée dans l'axe de la tige et à l'action de déchiquetage des broyeurs [53].

La caractérisation granulométrique par analyse d'image est ainsi beaucoup plus efficace. Elle permet notamment de distinguer la longueur, la largeur et le diamètre équivalent des particules [10]. La morphologie de granulats de chènevotte utilisés par Nguyen a été étudiée par analyse d'image et comparée à la courbe obtenue par tamisage mécanique sur la Figure 1-13b qui représente le tamisat cumulé ou le pourcentage surfacique (analyse d'image) en fonction de la taille des particules. Une nette différence entre la distribution granulométrique de la largeur et de la longueur est bien visible. Par ailleurs, la distribution granulométrique obtenue par tamisage mécanique se superpose systématiquement avec la distribution de la largeur des particules (Figure 1-13b), ce qui confirme que le tamisage discrimine les particules suivant leur largeur selon le mécanisme décrit par Picandet et al. [53] ou encore Igathinathane et al. [52] en Figure 1-13a. Cette tendance a également été démontrée par Nozahic sur un granulat chanvre et un granulat de tournesol où le recours à une méthode par analyse d'image est présenté comme indispensable pour obtenir une étude comparative fiable et pleinement représentative de la morphologie de granulats végétaux d'origine différente [10]. L'étude par analyse d'image effectuée par Nguyen (Figure 1-13b) montre que la longueur des particules peut varier entre 1 mm et 20 mm. La distribution de la longueur a toute son importance puisqu'il s'agit de la principale source de variabilité et d'incidence sur les caractéristiques finales du béton de chanvre (vis-à-vis de la largeur ou de l'épaisseur) [53]. Par conséquent, la mise en œuvre sur chantier ou par préfabrication nécessite une bonne caractérisation des granulats pour maîtriser la qualité des matériaux finis.



**Figure 1-13.** (a) Passage d'une particule de chènevotte à travers la maille du tamis par sa largeur [52] (b) Courbes granulométriques par analyse d'image et tamisage mécanique (CP : chènevotte pure - CF : chènevotte avec défibrage partiel - AI : analyse d'image [27])

### III. 2. 7. Composition chimique

Les constituants chimiques de la chènevotte ont été quantifiés par plusieurs auteurs, notamment Diquélou et al. [35] qui ont analysé trois chènevottes d'origines différentes. Les résultats, présentés dans le Tableau 1-4, montrent des ordres de grandeur assez proches. La composition chimique dépend de la variété, de la zone géographique de culture, de la nature du sol ou encore de la maturation de la plante.

**Tableau 1-4.** Composition chimique de la chènevotte (en pourcentage massique)

|      | Cellulose (%) | Hémicelluloses (%) | Lignine (%) | <sup>a</sup> Extractibles (%) |
|------|---------------|--------------------|-------------|-------------------------------|
| [54] | 48            | 12                 | 28          | 12                            |
| [35] | 47,3          | 18,3               | 21,8        | 16,3                          |
|      | 45,6          | 17,8               | 23,3        | 15,8                          |
|      | 49,2          | 21                 | 21,9        | 11,3                          |

<sup>a</sup>Cires, graisses, pectines, composés phénoliques et sucres extraits par différentes solutions aqueuses

### III. 3. Les liants minéraux

Le béton de chanvre est un mélange de chènevotte, de liant et d'eau.

Le liant minéral choisi doit garantir un enrobage le plus optimal des granulats végétaux, être adapté à la mise en œuvre du matériau et assurer des caractéristiques mécaniques satisfaisantes. Le liant produit le squelette rigide et la cohésion entre des granulats végétaux fortement déformables. Bien qu'il soit dosé en faible proportion volumique, il joue un rôle

particulièrement important [27]. Le choix du liant pourra également être guidé en fonction de son impact carbone.

Plusieurs types de liants minéraux ont pu être employés pour la confection des bétons de chanvre et sont présentés dans cette section. Les liants à base de chaux font l'objet d'une étude nettement plus approfondie car ce sont les plus utilisés pour ce type de matériau.

### III. 3. 1. Le ciment Portland

#### III. 3. 1. 1 Composition

Le ciment Portland provient de la cuisson à 1450°C du calcaire ( $\text{CaCO}_3$ ) et de l'argile (comprenant de la silice  $\text{SiO}_2$  et de l'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Le clinker est ainsi obtenu et se compose de silicates de calcium ( $\text{C}_3\text{S}$  et  $\text{C}_2\text{S}$ ) qui constituent l'essentiel des phases réactives et d'aluminates de calcium ( $\text{C}_3\text{A}$  et  $\text{C}_4\text{AF}$ ) qui représentent le complément (Tableau 1-5) [6]. La masse volumique absolue du ciment est de l'ordre de 3000 à 3200  $\text{kg.m}^{-3}$  [5].

**Tableau 1-5.** Composition minéralogique du ciment Portland CEM I [6]

| $\text{C}_2\text{S}$ (%) | $\text{C}_3\text{S}$ (%) | $\text{C}_3\text{A}$ (%) | $\text{C}_4\text{AF}$ (%) |
|--------------------------|--------------------------|--------------------------|---------------------------|
| 10–20                    | 60–65                    | 8–12                     | 8–12                      |

#### III. 3. 1. 2 Mécanismes de prise et de durcissement

Les réactions d'hydratation des silicates de calcium s'écrivent en notation cimentière<sup>4</sup> :



L'hydratation du  $\text{C}_3\text{S}$  est rapide et contribue significativement à la résistance au jeune âge (de quelques heures à 14 jours) tandis que celle du  $\text{C}_2\text{S}$  survient plus lentement et contribue davantage à la résistance à plus long terme [6].

L'hydratation du ciment Portland se résume pour l'essentiel au processus d'hydratation des  $\text{C}_3\text{S}$  qui sont présents en très forte proportion dans le ciment anhydre (Tableau 1-5). La prise s'effectue par un mécanisme de dissolution-précipitation. Les anhydres ( $\text{C}_3\text{S}$ ) passent progressivement en solution lorsque l'eau de gâchage est ajoutée. Leur solubilité étant plus

<sup>4</sup> Notation cimentière des phases minéralogiques : C =  $\text{CaO}$ , S =  $\text{SiO}_2$ , A =  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , F =  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , H =  $\text{H}_2\text{O}$

importante que celle des produits d'hydratation, la solution va atteindre la sursaturation et les C-S-H vont pouvoir précipiter à la surface des grains en dissolution [55].

La prise est suivie d'une période de durcissement à plus long terme et pendant laquelle la vitesse d'hydratation est limitée par la diffusion de l'eau et des ions à travers les premières couches d'hydrates [6].

L'hydratation du ciment est une réaction thermoactivée dont l'avancement dépend de l'histoire des températures. La loi d'Arrhenius est la plus appropriée pour décrire la sensibilité de la vitesse de durcissement à la température de cure. Elle introduit l'énergie d'activation apparente  $E_A$  qui représente la dépendance de la température à l'ensemble des réactions et des mécanismes ayant lieu lors de l'hydratation du ciment [56]. La vitesse des réactions d'hydratation  $f(T)$  s'exprime de la façon suivante [57] :

$$f(T) = A \exp\left(\frac{-E_A}{RT}\right) \quad \text{Eq. 1-3}$$

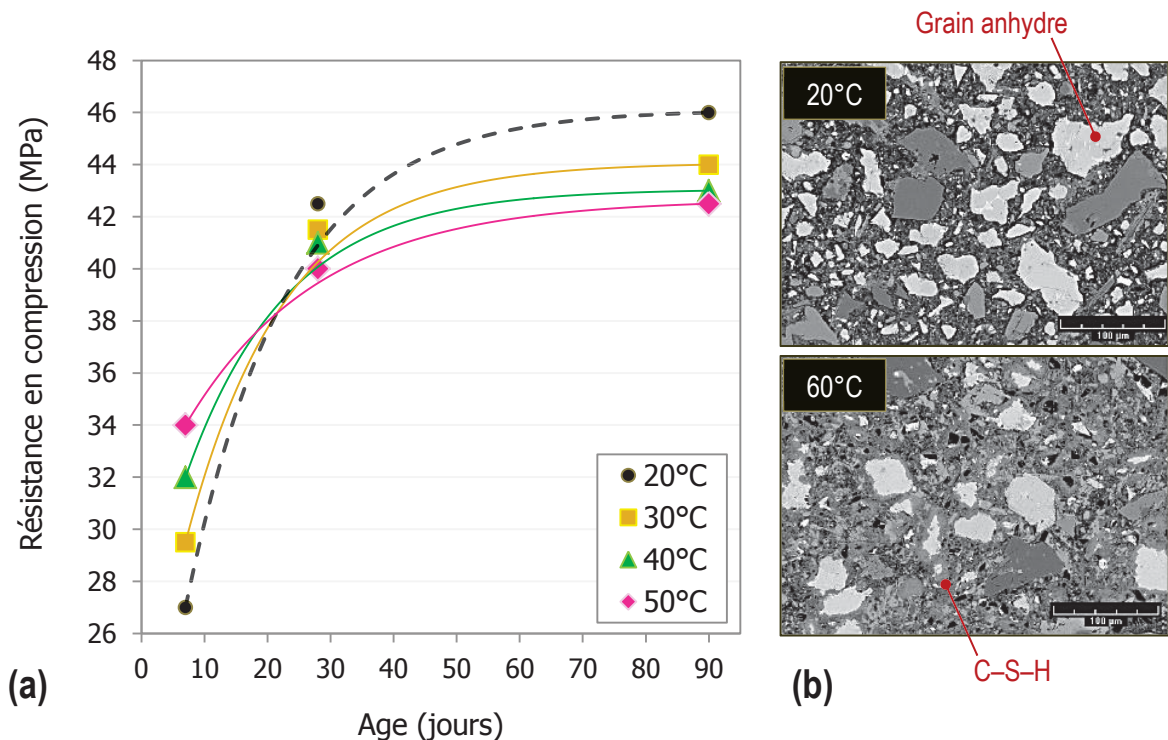
Avec :

- A : constante de proportionnalité
- $E_A$  : énergie d'activation apparente (de l'ordre de 40 kJ.mol<sup>-1</sup> pour le ciment Portland [57])
- R : constante des gaz parfaits (J.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup>)
- T : température d'hydratation (Kelvin).

L'énergie d'activation apparente dépend de la composition minéralogique du ciment et de sa finesse. A l'échelle du béton, les dosages en ciment, en eau et la présence d'ajuvants et d'additions minérales sont des facteurs qui impactent directement cette énergie d'activation [57].

Le recours à une cure initiale à température élevée est assez fréquent pour le traitement de matériaux de construction préfabriqués dont on souhaite accélérer le développement de la résistance en compression au jeune âge. De nombreuses études ont été menées à propos de l'influence de la température de cure sur l'hydratation et la résistance en compression de mortiers ou de bétons à base de ciment Portland [58]–[62]. Les auteurs en arrivent tous à la conclusion qu'une élévation de la température durant les premiers stades de l'hydratation augmente le développement de la résistance en compression au jeune âge mais peut avoir des conséquences néfastes à plus long terme. L'accélération des réactions d'hydratation est significative durant les premiers jours. Elle mène à une consommation plus rapide des grains de ciment anhydre et à la formation de C-S-H en quantités importantes, se traduisant ainsi par un développement de résistance à la compression plus rapide [62]. Toutefois, à plus long terme, la résistance à la compression des bétons conservés à température élevée (40 à 60°C) devient plus faible que celle des bétons conservés à température ambiante (20°C). La

résistance à la compression ultime s'en trouve finalement défavorisée. Ces constatations sont valables même lorsque la cure à température élevée ne concerne que les premiers jours de cure et que l'essai de compression est effectué plus tard. Les résultats de Boubekeur et al. [58] (Figure 1-14a) montrent bien que les résistances en compression de mortiers à base de ciment Portland après 7 jours de cure sont supérieures lorsque les mortiers sont conservés de 30°C à 50°C. Cependant, lorsque les essais de résistance à la compression sont effectués après 90 jours (Figure 1-14a), ce sont les mortiers conservés à 20°C pendant les 7 premiers jours qui présentent la résistance la plus élevée. Cet effet est attribué aux changements microstructuraux engendrés par le traitement à température élevée. Gallucci et al. [62] ont bien montré que la température a un effet sur la densité et la distribution des hydrates dans la matrice. Au jeune âge, les plus petits grains de ciment sont plus rapidement hydratés à température élevée (Figure 1-14b). En revanche, selon certains auteurs, le plafonnement de la résistance mécanique à long terme serait lié à une augmentation de la porosité capillaire provenant d'un développement microstructural plus grossier et d'hydrates distribués de manière plus hétérogène dans la matrice [58]–[62]. On soupçonne également la première couche de C–S–H à très faible porosité de jouer un rôle d'encapsulation des grains anhydres et d'empêcher l'hydratation complète [59]. Les travaux de Gallucci et al. [62] ont toutefois montré que ce n'est pas le degré d'hydratation lui-même qui est affecté par la température mais l'organisation microstructurale.



**Figure 1-14.** (a) Développement de la résistance en compression de mortiers à base de ciment Portland en fonction de la température durant les 7 premiers jours de cure [58] (b) Micrographies sur sections polies de bétons ordinaires après 1 jour à 20°C ou 60°C [62]



### III. 3. 1. 3 Compatibilité avec un granulat végétal

Le ciment Portland nécessite une cure humide au jeune âge ( $HR > 95\%$ ) et il a besoin d'une quantité d'eau équivalente à 38% de son poids pour une hydratation totale [55]. Par manque d'eau, l'hydratation peut s'arrêter et l'acquisition des caractéristiques mécaniques rester inachevée. Un excès d'eau par rapport à la stœchiométrie est connu pour altérer assez fortement les propriétés mécaniques de la pâte de ciment. Compte tenu de la très forte absorption d'eau des chènevottes, l'utilisation d'un tel liant hydraulique pour la confection d'agrobétons paraît délicate. La pré-saturation des granulats végétaux avant l'ajout de l'eau de gâchage peut empêcher la migration excessive d'eau vers la porosité du granulat et ainsi permettre de minimiser ce phénomène [26]. La gestion des transferts hydriques entre liant et granulat n'en reste pas moins problématique. Lorsque les bétons de chanvre ont été fabriqués à base de ciment Portland, Cerezo a constaté une solidification en surface des éprouvettes tandis que le cœur reste fortement poudreux. Cet effet de farinage est attribué au fort potentiel d'absorption d'eau de la plupart des granulats d'origine végétale qui se fait au détriment de l'hydratation du ciment pour lequel un manque d'eau peut se faire ressentir [10], [26], [27]. L'augmentation du rapport E/C n'est pas forcément une bonne solution car la quantité d'eau efficace pour l'hydratation du liant devient difficile à maîtriser.

Par ailleurs, la mise en contact des particules végétales avec un milieu fortement alcalin peut conduire à une solubilisation importante de polysaccharides extractibles et de produits de dégradation provenant de l'attaque alcaline. Les travaux de Govin [42] ont par exemple montré que les extraits de peuplier perturbent fortement les mécanismes de polymérisation des C-S-H. Ces phénomènes d'interaction risquent d'être très fortement impactants sur les mécanismes de prise et de durcissement du ciment Portland. Ils sont en partie responsables du farinage à cœur selon Nozahic [10].

La pâte de ciment Portland présente des caractéristiques mécaniques très élevées. Sa résistance en compression à 28 jours atteint environ 60 MPa et son module élastique est de l'ordre de 15 GPa en adoptant un rapport E/C égal à 0,43 [63]. L'association d'un liant au comportement plutôt fragile avec un granulat végétal fortement déformable paraît assez peu judicieuse si l'on veut éviter de générer des concentrations de contraintes et de déformations dans la zone de liaison.

### III. 3. 1. 4 Propriétés thermiques

La porosité d'une pâte de ciment est très faible si elle est comparée à d'autres matrices minérales. Elle correspond à la porosité des hydrates ( $\sim 5$  nm) et à la porosité capillaire ( $\sim 55$  nm) [6]. La conductivité thermique d'une pâte de ciment de densité apparente égale à  $\sim 1930 \text{ kg.m}^{-3}$  et formulée avec un rapport E/C = 0,33 a été évaluée à  $0,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  par Olmeda et al. [64]. Les mortiers à base de ciment ont une conductivité thermique de l'ordre

de  $1,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour une densité apparente se situant autour de  $2100 \text{ kg.m}^{-3}$  [64], [65]. Leur pouvoir isolant est donc plutôt médiocre.

### III. 3. 1. 5 Impact environnemental

Les émissions de  $\text{CO}_2$  générées par la production du ciment proviennent à la fois de la combustion des énergies fossiles utilisées dans le four lors de la calcination à  $1450^\circ\text{C}$  et de la décarbonatation du  $\text{CaCO}_3$ . Pour un ciment type CEM I (sans ajouts), la quantité de  $\text{CO}_2$  émise par tonne de ciment est de 890 kg. L'utilisation de ciments composés (avec additions minérales) permet de réduire cette émission à 660 kg [4], [6].

### III. 3. 2. Les chaux de construction

Contrairement au ciment Portland artificiel, l'utilisation de la chaux remonte à des temps très anciens. Pendant la période gréco-romaine, les premiers mortiers à base de chaux, de sable fin et d'additions pouzzolaniques (cendres volcaniques) permettent la construction des murs. Les chaux utilisées sont obtenues à partir d'un calcaire aussi pur que possible. Ce n'est qu'au début du XIX<sup>ème</sup> siècle que Vicat introduit clairement le phénomène de l'hydraulicité en établissant une classification liée au pourcentage d'argile présente dans le calcaire avant la cuisson. Les chaux hydrauliques font alors leur apparition [66].

Malgré l'hégémonie du ciment, la chaux connaît une période de renouveau, notamment pour la restauration de bâtiments anciens et dans le domaine de l'éco-construction.

#### III. 3. 2. 1 La chaux aérienne

##### III. 3. 2. 1. 1. Composition

La chaux aérienne (chaux calcique) est fabriquée à partir d'un calcaire pur ou contenant moins de 5% d'oxyde de magnésium ( $\text{MgO}$ ).

Elle est obtenue à partir de la décarbonatation de  $\text{CaCO}_3$  à  $900^\circ\text{C}$  (Eq. 1-4) :



La chaux vive ( $\text{CaO}$ ) est ensuite éteinte par addition d'eau. Cette opération d'extinction produit de l'hydroxyde de calcium  $\text{Ca(OH)}_2$  selon la réaction suivante (Eq. 1-5) :





Lorsque la quantité d'eau ajoutée lors du processus est contrôlée, on obtient une chaux en poudre. Différents types de chaux calciques (CL) existent en fonction de la teneur totale en CaO+MgO. La chaux aérienne pour le bâtiment la plus répandue est la CL90-S. Il s'agit d'une chaux calcique contenant au moins 80% de Ca(OH)<sub>2</sub> sur le produit fini [67] (Tableau 1-6). La lettre S indique en fait que la chaux est éteinte.

La masse volumique absolue de la chaux aérienne CL90-S est de l'ordre de 2200 à 2500 kg.m<sup>-3</sup> [5].

La chaux aérienne est souvent utilisée pour la réalisation de mortiers de construction, d'enduits et de badigeons [66].

**Tableau 1-6.** Composition minéralogique de la chaux aérienne CL90-S [67]

| Ca(OH) <sub>2</sub> (%) | CaCO <sub>3</sub> (incuit) (%) |
|-------------------------|--------------------------------|
| >80                     | ~5                             |

### III. 3. 2. 1. 2. Mécanismes de prise et de durcissement

Les mortiers à base de chaux aérienne effectuent leur prise par évaporation de l'eau libre en excès et carbonatation au contact du CO<sub>2</sub> atmosphérique. Il s'agit d'une réaction acido-basique très lente (plusieurs mois voire plusieurs années) qui se produit en milieu humide mais non saturé. La carbonatation s'effectue de la surface vers le cœur du mortier de la façon suivante [68] :

(i) Le CO<sub>2</sub> sous forme gazeuse se diffuse dans le réseau poreux ouvert du matériau et se dissout dans l'eau des pores pour former de l'acide carbonique H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (Eq. 1-6) :



(ii) H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> se dissocie en ions bicarbonates (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) et carbonates (CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>) (Eq.1-7 & 1-8) :



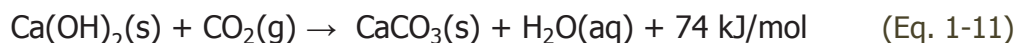
(iii) Parallèlement, Ca(OH)<sub>2</sub> se dissout dans l'eau des pores (Eq. 1-9) :



(iv) Les ions  $\text{Ca}^{2+}$  réagissent avec les ions  $\text{CO}_3^{2-}$  pour précipiter le carbonate de calcium  $\text{CaCO}_3$  (Eq. 1-10):



La réaction finale s'écrit donc de la façon suivante (Eq. 1-11) :



La carbonatation aérienne se traduit finalement par la précipitation progressive du  $\text{CaCO}_3$  dans les pores de petite taille. Il s'en suit une diminution de la microporosité avec le temps entraînant une densification du mortier (i.e. une augmentation de la densité apparente).

Les facteurs qui contrôlent les mécanismes et la cinétique de la réaction de carbonatation sont liés à la diffusion gazeuse (1) et à la réactivité du  $\text{CO}_2$  (2).

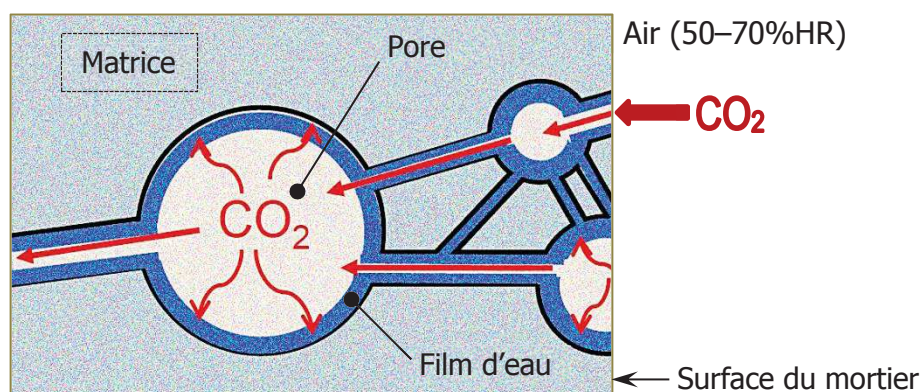
(1) La diffusion du  $\text{CO}_2$  gazeux dépend du réseau poreux du matériau (quantité, taille et répartition des pores), des conditions de cure imposées (en particulier l'humidité relative environnante et la concentration en  $\text{CO}_2$ ), de la teneur en eau initiale (donc du rapport  $E/L^5$ ), de la cinétique de séchage ou encore de la teneur en liant [68]–[72]. Si la porosité capillaire est complètement saturée en eau, la diffusion gazeuse du  $\text{CO}_2$  dans les pores est impossible et la carbonatation est bloquée.

(2) La réactivité chimique dépend de la nature du liant (phases minérales présentes) et de sa concentration. La forte teneur en  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  des chaux aériennes contribue à favoriser le processus de carbonatation [70]. Cizer et al. [68] expliquent par exemple que la surface spécifique des particules de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  a une influence sur la réactivité du  $\text{CO}_2$ . La quantité d'eau dans les pores doit à nouveau être considérée comme un facteur d'influence sur les réactions chimiques. En effet, en l'absence totale d'eau dans les pores, la dissolution du  $\text{CO}_2$  est impossible.

La carbonatation nécessite la présence d'une fine couche d'eau qui tapisse la paroi des pores (Figure 1-15.). On sait que la quantité d'eau présente dans les pores est directement reliée à l'humidité relative de l'air ambiant pour les matériaux poreux. Lorsque l'humidité relative est très élevée ( $\text{HR} > 90\%$ ), la condensation capillaire risque de bloquer la diffusion du  $\text{CO}_2$  au sein du réseau de pores interconnecté. La carbonatation est possible pour une humidité relative comprise entre 40 et 90%HR [68]. Selon Cizer et al. [68], cela permettrait de maintenir un film d'eau dans les pores dont l'épaisseur est comprise entre 0,4 et 0,8 nm dans les mortiers de chaux aérienne. Il est toutefois admis que la plage d'humidité relative idéale pour la carbonatation est comprise entre 50 et 70%HR [69], [70].

---

<sup>5</sup> Eau/Liant



**Figure 1-15.** Diffusion du  $\text{CO}_2$  dans le système poreux de mortiers de chaux [68]

### III. 3. 2. 1. 3. Propriétés mécaniques

Le processus de durcissement des mortiers de chaux aérienne par carbonatation étant très lent, leur résistance en compression après 1 mois excède rarement 1 MPa [73], [74]. Le développement de la résistance mécanique dans le temps va dépendre en grande partie des conditions d'humidité relative. La résistance en compression des mortiers de chaux aérienne peut atteindre jusqu'à 5 MPa après 1 an de cure à 20°C et 60%HR [73].

Pour des applications en restauration et en réparation de maçonneries anciennes, les mortiers de chaux sont largement préférables aux mortiers de ciment notamment en raison de leur grande plasticité et de leur perméabilité à la vapeur d'eau. Toutefois le durcissement particulièrement lent en conditions humides et la très faible résistance mécanique à 28 jours restent problématiques.

L'utilisation d'agents rétenteurs d'eau (comme les éthers de cellulose ou la gomme de guar) peut permettre d'améliorer les propriétés rhéologiques des mortiers de chaux à l'état frais [75]. Cependant, les travaux d'Izaguirre et al. [75] ont mis en évidence une diminution de la résistance en compression lorsque ces adjuvants sont utilisés. Ces mêmes auteurs [76] montrent également que l'utilisation d'agents hydrophobants et entraîneurs d'air (oléate de sodium, stéarate de calcium) visant à diminuer l'absorption d'eau par capillarité des mortiers peuvent aussi entraîner une augmentation de leur résistance en compression après 28 jours.

L'ajout de composés pouzzolaniques reste le moyen le plus efficace et le plus étudié pour améliorer nettement les résistances mécaniques des mortiers de chaux aérienne à court ou moyen terme. Il s'agit de pouzzolanes naturelles (comme la pierre ponce), de pouzzolanes calcinées (le métakaolin) ou de sous-produits de l'industrie comme les cendres volantes ou les fumées de silice [6]. De nombreuses études existent notamment sur les mortiers chaux aérienne-métakaolin [77]–[82]. Le métakaolin provient de la cuisson du kaolin broyé à 650–800°C et il se compose d'environ 60% de silice ( $\text{SiO}_2$ ) et 30% d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) [80]. Il réagit avec  $\text{Ca(OH)}_2$  pour former des hydrates générateurs de résistance selon une réaction

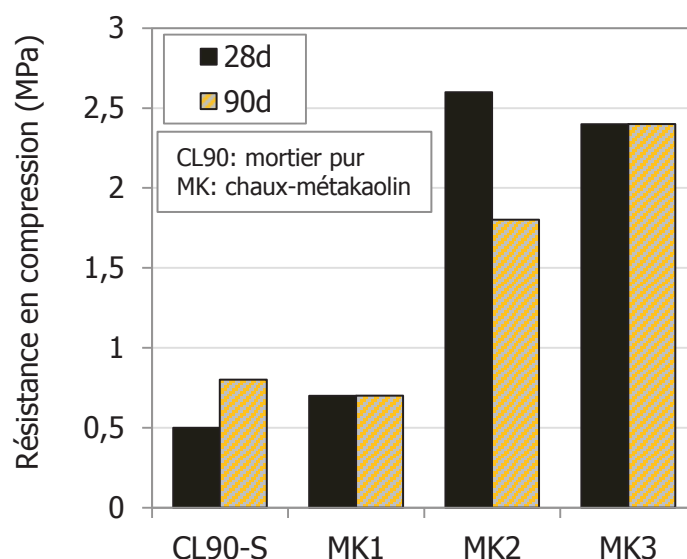
pouzzolanique qui peut s'écrire de la façon suivante (Eq. 1-12) :



Où  $\text{C}_5\text{AS}_2\text{H}_{10}$  représente en réalité une composition moyenne des produits d'hydratation. Lorsque la chaux est en excès, deux phases néoformées correspondant aux C-S-H et aux AFm ( $\text{C}_4\text{AH}_{13}$ ) accompagnent la portlandite (CH). Si la chaux est entièrement consommée, on trouvera les deux phases néoformées précédentes ainsi que  $\text{C}_2\text{ASH}_8$ .

Le gain en résistance mécanique est lié à cette réaction pouzzolanique mais également à l'effet densificateur du métakaolin qui augmente la compacité du mélange [6]. Les mortiers chaux-métakaolin restent très sensibles aux conditions de cure. Ils présentent l'avantage de durcir bien plus vite que les mortiers de chaux aérienne pure dans des conditions d'humidité relative élevée.

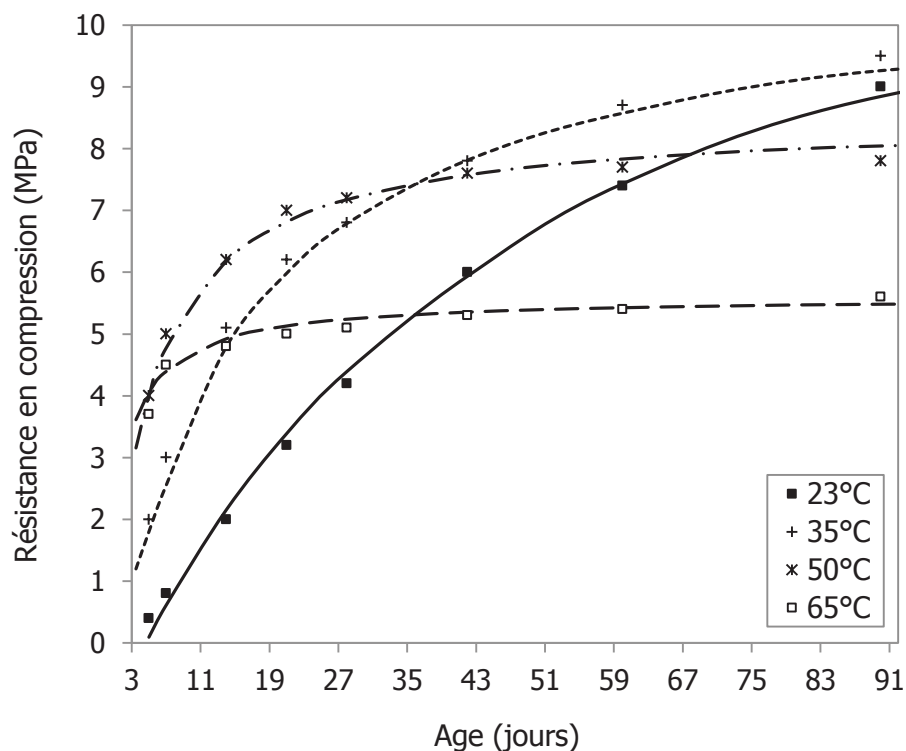
L'ajout de 20% de métakaolin par rapport à la masse de chaux semble être optimal pour augmenter la résistance en compression des pâtes et mortiers de chaux selon de nombreux auteurs [77]–[79]. L'étude menée par Velosa et al. [80] met en évidence l'augmentation de la résistance en compression de mortiers de chaux (ratio volumique chaux/métakaolin = 2) conservés à 65%HR lorsqu'ils incorporent l'addition pouzzolanique. Les résultats dépendent du type de métakaolin utilisé. La composition chimique du métakaolin influence en effet sa réactivité et par conséquent le développement de la résistance. Il est aussi intéressant de noter dans cette étude que la résistance en compression n'évolue plus après 28 jours sur les mortiers chaux-métakaolin (Figure 1-16).



**Figure 1-16.** Résistance en compression de mortiers chaux-métakaolin (MK) comparée à celle de mortiers de chaux pure (CL90-S) [80]

La réaction pouzzolanique (de type Eq. 1-12), comme la réaction d'hydratation du ciment Portland, est favorisée lorsque l'humidité relative est élevée. Il a été vu que l'hydratation des  $C_3S$  peut également être accélérée lorsque la température de cure est élevée par rapport à la température ambiante (i.e. 40 – 60°C). Cet effet cinétique permet d'obtenir de meilleures résistances en compression uniquement au jeune âge (avant 3 à 7 jours). En revanche, il est connu que les liants de type chaux-pouzzolane ont une énergie d'activation plus élevée que les ciments Portland ( $E_a \approx 66 \text{ KJ.mol}^{-1}$  [83]). Par conséquent, la réaction pouzzolanique se montre généralement plus sensible à la température de cure que la réaction d'hydratation du ciment Portland [83].

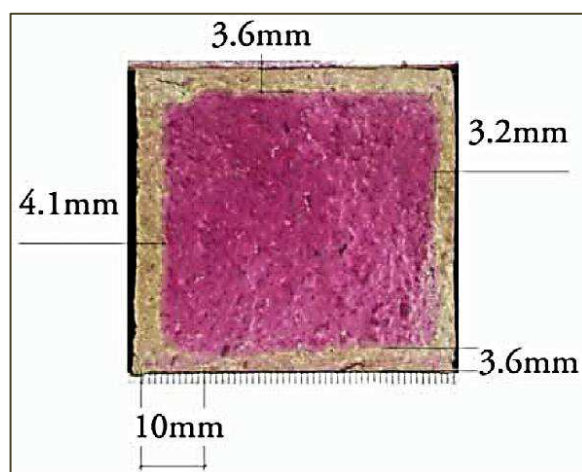
Les travaux de Shi et Day [83] montrent que la conservation de pâtes chaux-pouzzolane naturelle (20% de chaux aérienne et 80% de pouzzolane) à des températures élevées (de 35°C à 65°C) est bénéfique jusqu'à 30 jours de cure au minimum. Le développement des résistances plus lent des liants chaux-pouzzolane par rapport à celui des ciments Portland permet effectivement d'observer l'effet cinétique à plus long terme. Les pâtes conservées à 23°C n'atteignent que 4 MPa à 28 jours lorsque celles conservées à 35°C atteignent plus de 7 MPa (Figure 1-17). Cependant, le plafonnement de la résistance à un niveau plus faible se reproduit comme pour les mortiers de ciment Portland et de façon très dommageable pour la conservation à 65°C (Figure 1-17).



**Figure 1-17.** Effet de la température de cure sur l'acquisition de la résistance en compression de pâtes pures chaux-pouzzolane (cure à humidité saturée) [83]

La carbonatation naturelle est un processus lent lié à la très faible concentration en  $\text{CO}_2$  dans l'atmosphère (0,03–0,04%) [69]. La conservation des mortiers à base de chaux dans un environnement à forte concentration en  $\text{CO}_2$  pourrait alors permettre d'obtenir de plus fortes résistances à la compression après quelques semaines. Le test de carbonatation accélérée est souvent utilisé pour étudier la durabilité des matériaux cimentaires selon la norme XP P18-458 [84] qui recommande une conservation à 20°C et 65%HR dans une enceinte de carbonatation accélérée à 50% de  $\text{CO}_2$  selon les travaux de Turcry et al. [84].

Il existe un certain nombre de travaux de recherche sur la carbonatation naturelle des mortiers de chaux et les techniques permettant de la caractériser, en particulier ceux de Lawrence et al. [85]–[87]. Les auteurs étudient l'effet de la carbonatation sur la porosité des mortiers ou encore la profondeur de carbonatation estimée par la phénolphthaléine (Figure 1-18). Ils évaluent également le taux de carbonatation à l'aide de techniques par analyse thermogravimétrique (ATG).



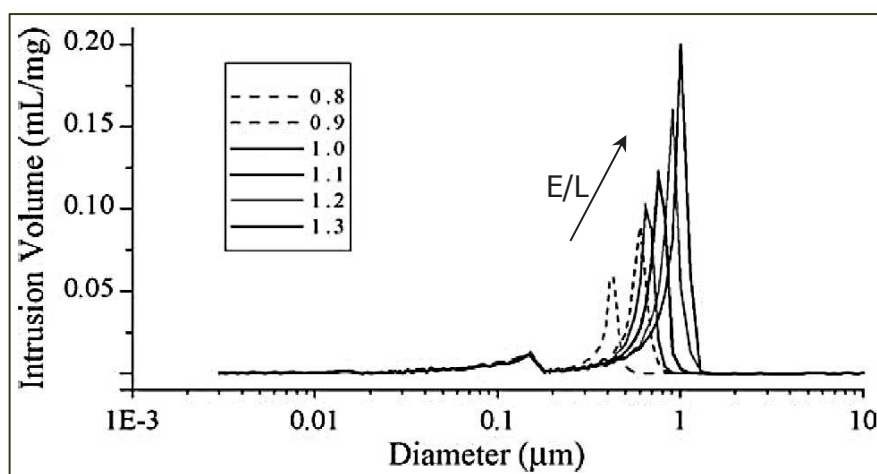
**Figure 1-18.** Test à la phénolphthaléine sur la section d'un mortier de chaux [86]

En revanche, très peu de travaux portent sur la carbonatation accélérée des mortiers de chaux. Seuls ceux de Cultrone et al. [88] s'intéressent à comparer des mortiers de chaux conservés en conditions naturelles avec des mortiers ayant subi une cure en carbonatation accélérée. Toutefois, cette étude se focalise principalement sur la microstructure des phases minérales. Les auteurs évaluent l'avancement de la carbonatation par ATG, diffraction des rayons X (DRX) et gain massique des échantillons. Ils obtiennent un taux de transformation de la portlandite ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) en calcite ( $\text{CaCO}_3$ ) de l'ordre de 90% en une semaine suite à une conservation des mortiers dans une enceinte à 25°C – 50%HR et saturée en  $\text{CO}_2$ . Il s'en suit une chute brutale de la consommation en  $\text{CO}_2$ . L'utilisation d'une trop forte concentration en  $\text{CO}_2$  est soupçonnée de dégager une chaleur élevée entraînant un séchage prématuré des échantillons et l'arrêt des mécanismes réactifs par dissolution du  $\text{CO}_2$  [88]. D'autres facteurs

comme la libération d'eau durant le processus de carbonatation ou la formation de coquilles imperméables de calcite sont susceptibles d'empêcher la carbonatation totale [86].

#### III. 3. 2. 1. 4. Porosité et propriétés hygrothermiques

Les pâtes de chaux aérienne se caractérisent par une importante porosité capillaire fortement interconnectée. D'après Lanas et Alvarez [73], la porosité ouverte des mortiers de chaux aérienne peut varier de 25 à 50%. La distribution porale des pâtes de chaux a été étudiée par Arandigoyen et al. [89] en fonction du rapport E/L variant de 0,8 à 1,3 (Figure 1-19). Elle se caractérise par une gamme de pores dont la taille varie entre 0,5 et 1  $\mu\text{m}$ . Elle comprend également une famille de pores de très petite taille ( $\sim 0,1 \mu\text{m}$ ) correspondant à la porosité des cristaux.



**Figure 1-19.** Distribution porale de pâtes de chaux aérienne en fonction du rapport Eau/Chaux [89]

La conductivité thermique sèche de mortiers de chaux aérienne a été déterminée par Vejmelková et al. [90] et Cerny et al. [91]. Elle se situe entre 0,67 et 0,84  $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Les chaux aériennes présentent une excellente perméabilité à la vapeur d'eau et permettent aux mortiers d'être perspirants. La diffusion puis l'évacuation de la vapeur d'eau vers l'extérieur permettent de limiter la condensation à cœur comme cela peut être le cas des mortiers de ciment qui sont 10 fois moins perméables que les mortiers de chaux [6].

#### III. 3. 2. 1. 5. Impact environnemental

Les émissions de  $\text{CO}_2$  totales générées par la combustion et la décarbonatation sont aussi élevées que celles du ciment Portland ( $\sim 870 \text{ kg de } \text{CO}_2 \text{ par Tonne de chaux aérienne}$ ) [92]. Effectivement, malgré une émission de combustion inférieure à celle du ciment (cuisson à  $900^\circ\text{C}$ ), les émissions de décarbonatation de la chaux aérienne restent élevées. En revanche,

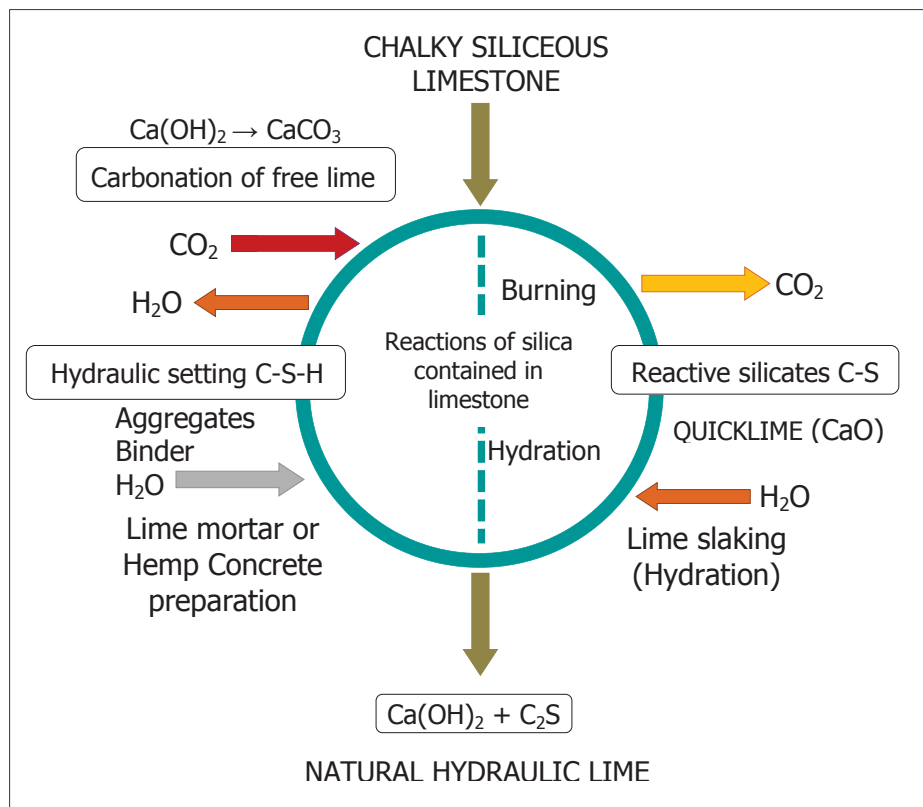


il faut absolument prendre en compte la fixation du  $\text{CO}_2$  lors de la carbonatation qui représente  $535 \text{ kgCO}_2/\text{T}$ . L'émission résiduelle est donc de  $335 \text{ kgCO}_2/\text{T}$  [92].

### III. 3. 2. 2 La chaux hydraulique

#### III. 3. 2. 2. 1. Composition

La chaux hydraulique est obtenue à partir de calcaires qui contiennent des silicates. Les calcaires naturels sont souvent composés de minéraux siliceux et silicatés dits réactifs. Pour des températures de cuisson situées autour de  $1200^\circ\text{C}$ , l'oxyde de calcium  $\text{CaO}$  se combine avec ces éléments pour former des silicates de calcium. Les mécanismes de décarbonatation du  $\text{CaCO}_3$  et d'extinction de la chaux vive sont identiques à ceux de la chaux aérienne. Ils mènent cette fois-ci à l'obtention d'une chaux contenant de l'hydroxyde de calcium  $\text{Ca(OH)}_2$  et des silicates dicalciques ( $\text{C}_2\text{S}$ ) [66], [93] (Figure 1-20).



**Figure 1-20.** Fabrication et mécanismes de prise de la chaux hydraulique naturelle [93]

La composition chimique de la matière première (rapport entre  $\text{CaO}$  et  $\text{SiO}_2$ ) va influencer la proportion en  $\text{C}_2\text{S}$  de la chaux et par conséquent ses propriétés hydrauliques.

Les chaux hydrauliques naturelles sont notées NHL (Natural Hydraulic Lime) et se voient attribuer un indice en fonction de leur résistance à la compression à 28 jours qui est reliée à l'indice d'hydraulicité (NHL2/NHL3.5/NHL5). Par exemple, la chaux hydraulique NHL3.5 est

modérément hydraulique, elle contient une proportion intermédiaire en  $C_2S$  et sa résistance à la compression minimale à 28 jours suivant la norme NF EN 459-1 est de 3,5 MPa [67].

La composition minéralogique des NHL est présentée dans le Tableau 1-7.

**Tableau 1-7.** Composition minéralogique des chaux hydrauliques naturelles NHL [94]

| $Ca(OH)_2$ (%) | $C_2S$ (%) | $CaCO_3$ (incuit) (%) |
|----------------|------------|-----------------------|
| 30–50          | 20–40      | 5–20                  |

La masse volumique absolue des chaux hydrauliques naturelles est de l'ordre de 2500 à 2700  $kg.m^{-3}$  [5].

### III. 3. 2. 2. Mécanismes de prise et de durcissement

Les chaux hydrauliques naturelles ont la propriété de faire prise et de durcir à la fois par réaction d'hydratation avec l'eau de gâchage (prise hydraulique) et par réaction avec le  $CO_2$  de l'air (prise aérienne identique à celle de la chaux CL90-S) (Figure 1-20).

L'hydratation des  $C_2S$  s'effectue selon la réaction suivante (Eq. 1-13) [6] :



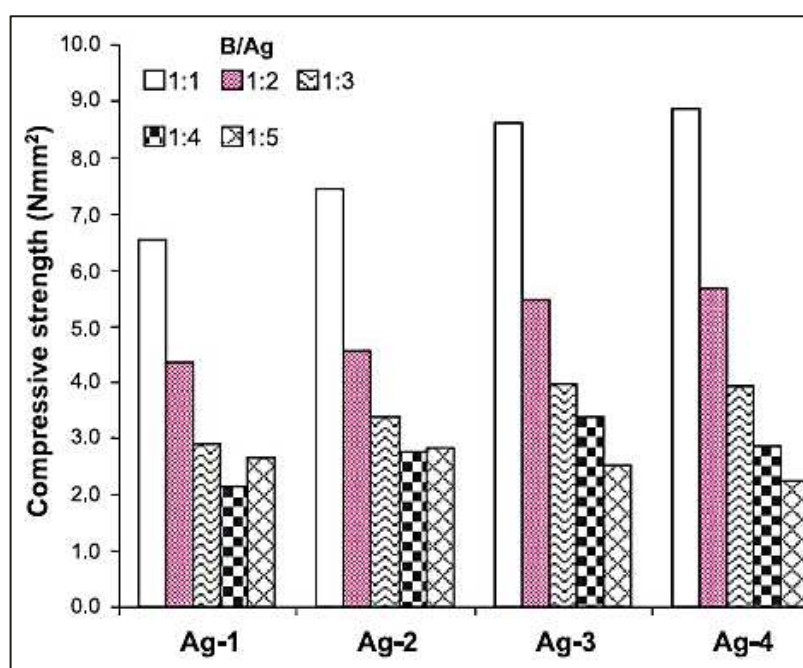
Cette réaction d'hydratation est très souvent considérée comme rapide par rapport à la carbonatation aérienne. Toutefois, selon Lanas et al. [95], l'hydratation des  $C_2S$  dans des mortiers de chaux hydraulique conservés à 60%HR apporte sa contribution principalement au-delà de 28 jours. Le durcissement des mortiers de chaux hydrauliques par hydratation et carbonatation reste donc assez lent et ne cesse de s'accroître jusqu'à 180 jours [95].

### III. 3. 2. 3. Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques des chaux hydrauliques varient assez nettement en fonction du degré d'hydraulicité de la chaux, du ratio E/L et des conditions de cure. Ces paramètres sont évidemment en lien direct avec la réaction d'hydratation des phases silicatées ( $C_2S$ ).

Par exemple, la résistance à la compression de la chaux NHL5 devrait être au minimum de 5 MPa après 28 jours sur mortier normalisé (Liant/Granulat = 1/3 en masse) pour une conservation à plus de 90%HR [96]. La résistance en compression de mortiers NHL5 obtenue par Lanas et al. [95] varie de 2 à 9 MPa en fonction du type de granulat utilisé (Ag-n) et du dosage en liant (B/Ag) (Figure 1-21). La conservation a lieu à 60%HR, ce qui n'est pas forcément favorable à l'hydratation d'une chaux à l'indice d'hydraulicité élevé. Ceci pose la question de la compétition entre les mécanismes de l'hydratation et de la carbonatation dans ce type de liant à base de chaux hydratée et de silicates de calcium. Ce problème a notamment été soulevé par les travaux de Cizer et al. [97]. Lorsque l'humidité relative est

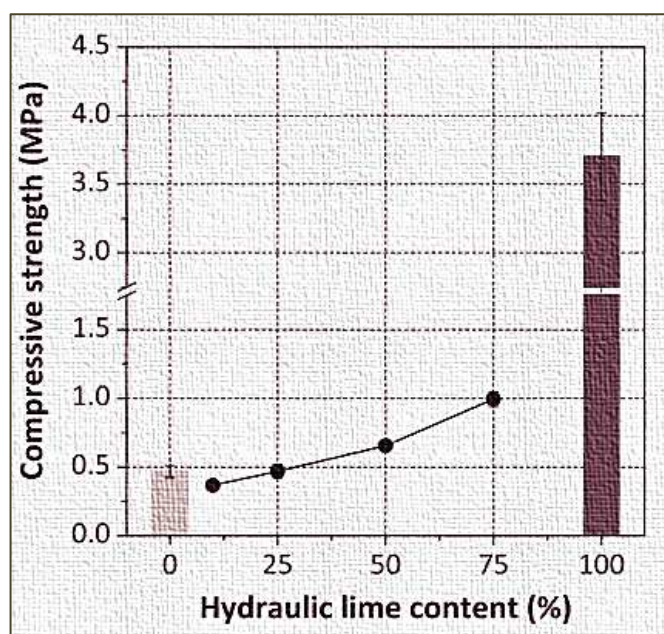
faible (<65%HR), le processus de carbonatation se trouve favorisé tandis que les réactions d'hydratation sont fortement compromises en raison de conditions trop sèches qui induisent trop rapidement un manque d'eau. Dans la situation inverse, lorsque l'humidité relative est élevée (>90%HR), la carbonatation est quasiment bloquée alors que les conditions peuvent être considérées comme optimales pour l'hydratation. L'influence des conditions de cure sur la résistance mécanique des chaux hydrauliques a fait l'objet de quelques études comme celles de Grilo et al. [94], [98] et Arizzi et al. [99]. Ces auteurs constatent que la résistance en compression de mortiers à base de NHL3.5 est plus élevée lorsqu'ils sont conservés à 90–95%HR que lorsque la cure a lieu à 60–65%HR. Ceci sera d'autant plus vérifié que l'indice d'hydraulicité de la chaux est élevé. La norme NF EN 459-2 [96] préconise d'ailleurs une conservation identique à celle de la chaux aérienne pour la chaux NHL2, faiblement hydraulique, c'est-à-dire à 65%HR (carbonatation optimale) tandis qu'elle recommande une conservation à plus de 90%HR pour les chaux NHL3.5 et NHL5.



**Figure 1-21.** Résistance en compression de mortiers de chaux hydraulique NHL5 après 28 jours à 60%HR suivant le type de granulat et le ratio Liant/Granulat [95]

Si la chaux aérienne, qui durcit uniquement au contact du  $\text{CO}_2$  et ne nécessite que très peu d'eau pour sa carbonatation, semble être un liant idéal pour la confection des bétons de chanvre, son utilisation seule est peu recommandée compte tenu du temps de durcissement à cœur extrêmement lent [27], [85]. D'après Bütschi [100], l'ajout de 50% en masse de chaux hydraulique naturelle à la chaux aérienne donne des résultats intéressants en terme de résistance mécanique des bétons de chanvre. Ce constat est en contradiction avec De

Bruijn [101] qui montre que l'ajout de NHL5 n'entraîne qu'une très faible augmentation de la résistance en compression des bétons de chanvre à base de chaux hydratée. L'étude de Silva et al. [102] portant sur des mortiers de chaux montre pourtant bien que plus la proportion en chaux hydraulique est importante, plus la résistance en compression augmente par rapport à un mortier à base de chaux aérienne (Figure 1-22). Ceci va se faire évidemment au détriment de la porosité et de la perméabilité à la vapeur d'eau [102].



**Figure 1-22.** Résistance en compression de mortiers à base de chaux aérienne progressivement substituée par une chaux hydraulique NHL5 (conservation à 60%HR à l'exception des mortiers de chaux hydraulique pure à 95%HR) [102]

On peut enfin noter qu'il n'existe aucune étude à propos de l'influence de la température de cure sur le développement de la résistance mécanique des chaux hydrauliques naturelles sans additions.

#### III. 3. 2. 2. 4. Porosité et propriétés hygrothermiques

La porosité des chaux hydrauliques est intermédiaire entre celle des chaux aériennes et des ciments Portland [6]. Silva et al. [102] montrent que la porosité totale des mortiers de chaux hydraulique est sensiblement identique à celle des mortiers de chaux aérienne mais que le diamètre moyen des pores est bien plus faible sur les mortiers de chaux hydraulique [102]. La conductivité thermique des mortiers de chaux hydraulique reste pourtant du même ordre de grandeur que celle des mortiers de chaux aérienne selon Amziane et Arnaud [6]. Silva et al. [102] mettent en évidence une perméabilité à la vapeur d'eau plus faible sur les mortiers de chaux hydraulique par rapport aux mortiers de chaux aérienne.

### III. 3. 2. 5. Impact environnemental

Comme pour la chaux aérienne, la fixation du  $\text{CO}_2$  par carbonatation est soustraite aux émissions de  $\text{CO}_2$  par combustion des énergies fossiles et décarbonatation du  $\text{CaCO}_3$ . L'émission résiduelle finale se situe donc entre 370 et 415 kg  $\text{CO}_2$ /T de chaux hydraulique en fonction du type de NHL [92].

### III. 3. 3. Choix d'un liant pour les agrobétons

Nous avons vu que le ciment Portland peut poser des problèmes de compatibilité avec les granulats végétaux (transferts hydriques, perturbation des mécanismes de formation des hydrates, liant trop rigide). Par ailleurs, les agrobétons doivent pouvoir optimiser l'enveloppe des bâtiments par leur légèreté et leurs qualités hygrothermiques. Dans ce sens, l'utilisation du ciment Portland est loin d'être la meilleure solution (densité élevée, porosité faible, peu perméable à la vapeur d'eau). Il serait regrettable que le liant limite fortement la perspiration et la régulation de l'humidité intérieure qui résulterait de l'utilisation de granulats végétaux hygroscopiques [29]. De plus, l'impact environnemental de ce liant est en contradiction avec la démarche de développement des écomatériaux de construction.

L'utilisation de la chaux paraît bien plus adéquate pour la confection des agrobétons. Sa perméabilité à la vapeur d'eau, sa faible densité (notamment celle de la chaux aérienne), sa prise par carbonatation aérienne et son comportement ductile sont des atouts pour une association avec des granulats végétaux hygroscopiques et déformables.

Dans ce travail de thèse, un liant à base de 50% de CL90-S et 50% de NHL3.5 en masse a été choisi. Dans la mesure où l'étude se propose en partie de mieux comprendre les mécanismes d'hydratation et de carbonatation au sein d'agrobétons à base de chaux pure en fonction des conditions de cure, le système n'a pas été complexifié par l'incorporation d'un liant pouzzolanique.

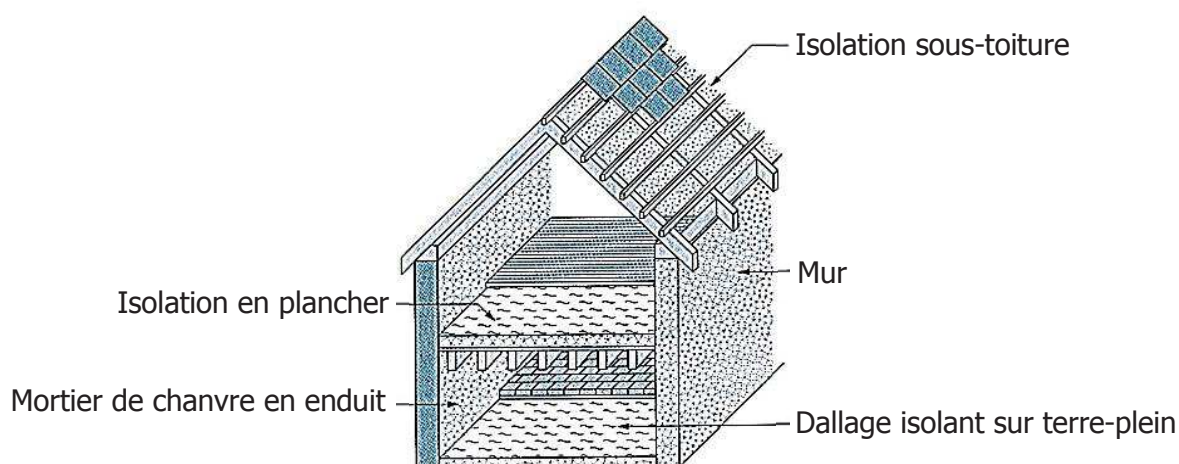
## IV. Le béton de chanvre et ses propriétés

### IV. 1. Formulation et mise en œuvre

Les « bétons de chanvre » sont obtenus à partir d'un mélange de chènevotte, d'eau, d'un liant minéral seul ou d'un mélange de liants [103].

Les règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en béton de chanvre [103] définissent les caractéristiques et les règles de mise en œuvre des bétons de chanvre pour la réalisation de murs (remplissage de murs extérieurs, doublage de parois porteuses), l'isolation sous-

toiture ou encore l'isolation de sol (Figure 1-23). Les caractéristiques (densité apparente et conductivité thermique sèche) et les performances mécaniques minimales des applications principales sont reportées dans le Tableau 1-8. Le béton de chanvre utilisé en sous-toiture est très peu dosé en liant (de l'ordre de  $100 \text{ à } 120 \text{ kg.m}^{-3}$  de liant). Il assure principalement une fonction hygrothermique et n'a que très peu de tenue mécanique. La formulation de type « MUR » est un bon compromis entre isolation thermique et résistance mécanique. Elle contient un dosage intermédiaire en granulats (environ  $300 \text{ kg.m}^{-3}$  de liant) [6].



**Figure 1-23.** Applications du béton de chanvre [6]

**Tableau 1-8.** Caractéristiques et performances mécaniques minimales des applications du béton de chanvre sur des échantillons stabilisés à  $20^{\circ}\text{C}$  et 50%HR [6], [25], [104]

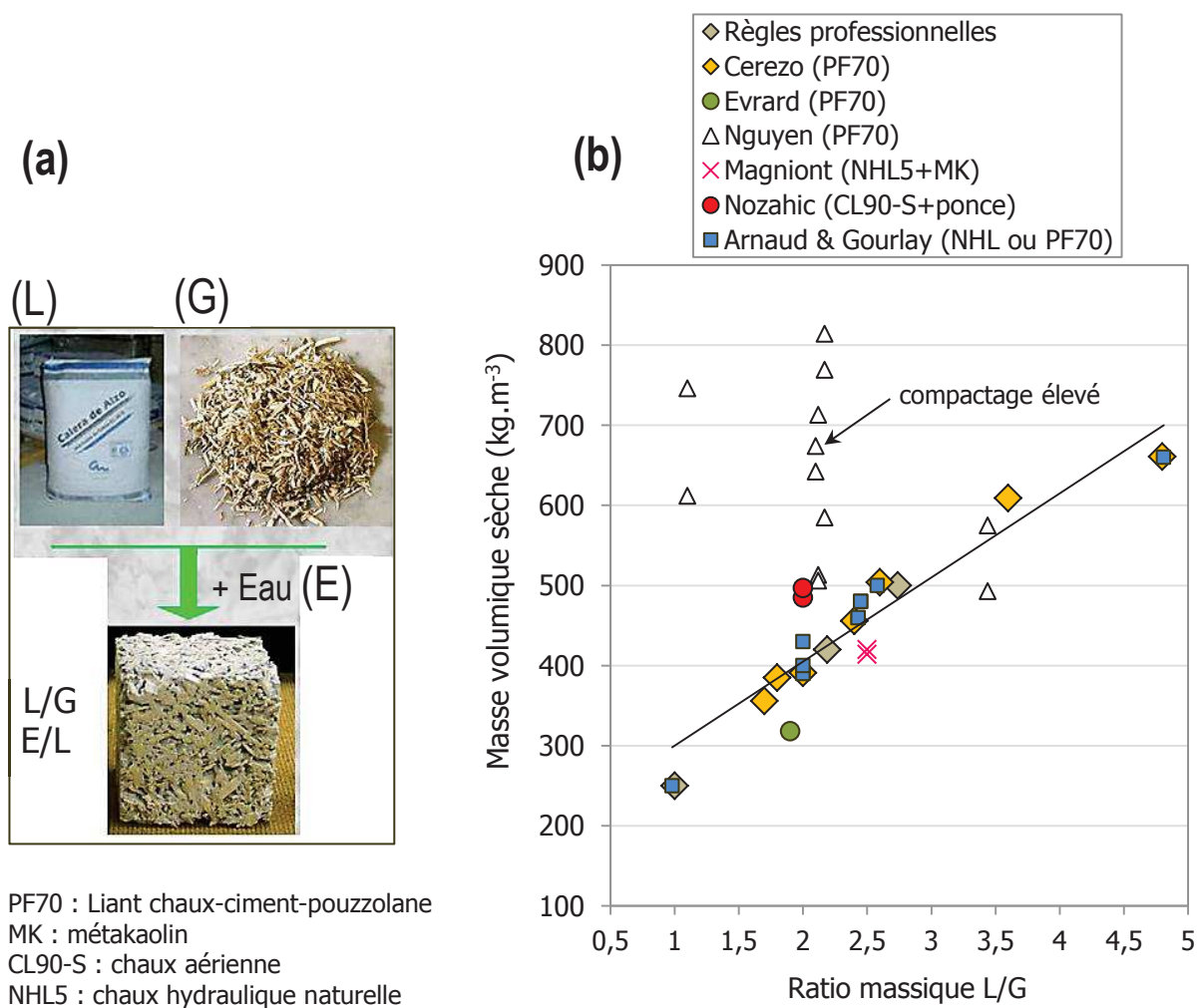
| Application  | MUR  | TOIT  | SOL   |
|--|------|-------|-------|
| Pourcentage massique de chènevotte (%)                           | ~15  | ~25   | ~11   |
| Densité apparente ( $\text{kg.m}^{-3}$ )                         | ~400 | ~250  | ~500  |
| Conductivité thermique sèche ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) | ~0,1 | ~0,06 | ~0,12 |
| Résistance en compression seuil ( $\text{MPa}$ ) <sup>a</sup>    | >0,2 | >0,05 | >0,3  |
| Module d'élasticité ( $\text{MPa}$ ) <sup>a</sup>                | >15  | >3    | >15   |

<sup>a</sup> Après 60 jours de cure à  $20^{\circ}\text{C}$  et 50%HR

Le béton de chanvre peut être mis en œuvre de plusieurs façons. Le béton de chanvre banché est le plus couramment utilisé pour la réalisation des murs sur chantier. La mise en œuvre s'effectue alors par un compactage manuel de lits successifs. Une mise en œuvre par projection peut également être utilisée, notamment en rénovation. Enfin, les bétons de chanvre peuvent être confectionnés en atelier pour la préfabrication de blocs à maçonner ou d'éléments préfabriqués (par moulage ou vibrocompaction).



En laboratoire, de nombreuses formulations de bétons de chanvre ont été étudiées par un certain nombre de chercheurs. Le liant minéral le plus fréquemment utilisé correspond à un liant préformulé à base de chaux aérienne, de liants hydrauliques (chaux hydraulique ou ciment) et de composés pouzzolaniques (notamment le liant commercial PF70). La méthode de mise en œuvre ainsi que les ratios massiques L/G (Liant/Granulat) et E/L (Eau/Liant) sont des paramètres de formulation qui vont influencer directement les propriétés finales des bétons de chanvre (thermiques et mécaniques) (Figure 1-24a) [104]. L'évolution de la masse volumique apparente à l'état sec en fonction du ratio massique L/G est reportée en Figure 1-24b pour les formulations établies par les règles professionnelles et les bétons de chanvre étudiés par plusieurs auteurs [4], [10], [25]–[28], [103], [104].

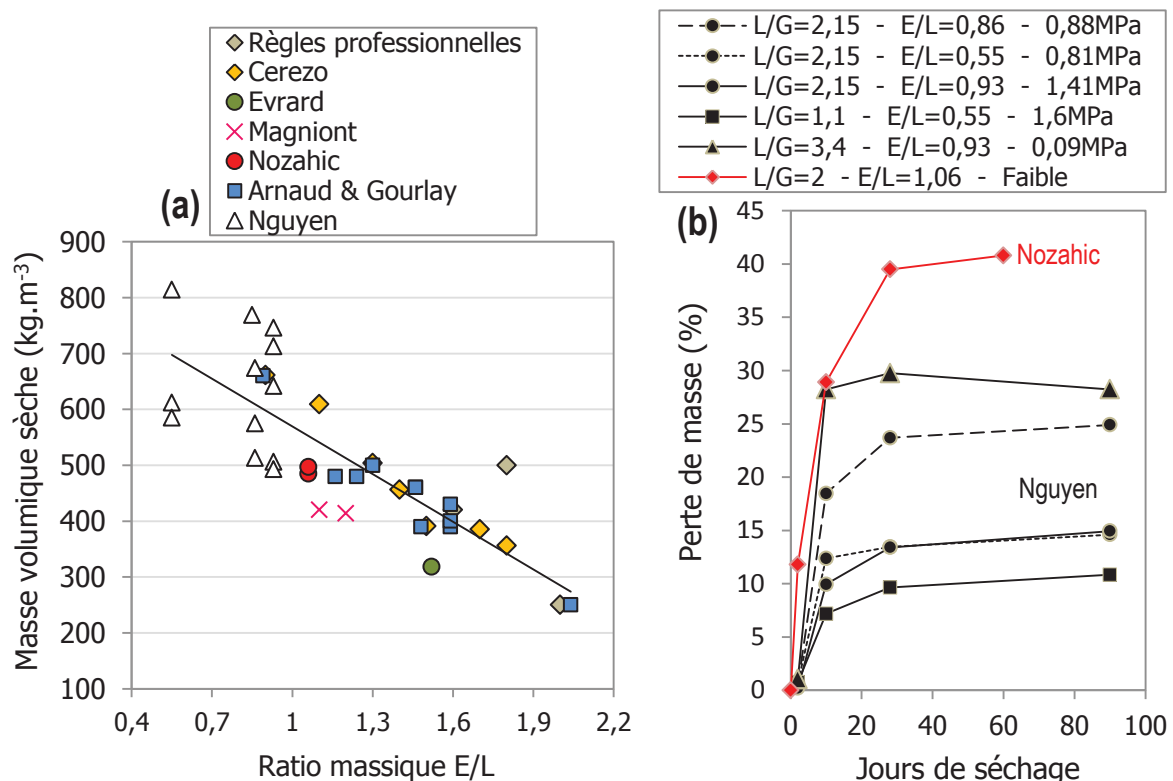


**Figure 1-24.** (a) Formulation du béton de chanvre en laboratoire, (b) Masse volumique apparente des bétons de chanvre à l'état sec en fonction du ratio massique Liant/Granulat (L/G) [4], [10], [25]–[28], [103], [104]



L'augmentation de la densité apparente des échantillons avec la diminution du dosage en chènevotte est clairement visible. De nombreuses formulations sont étudiées pour un ratio massique  $L/G \approx 2$  et une masse volumique apparente à l'état sec de 400 à 500  $\text{kg.m}^{-3}$  (formulation MUR). Avec des liants sensiblement différents, les densités apparentes obtenues sont équivalentes pour un ratio  $L/G$  donné si l'on compare les résultats de Cerezo, Evrard, Magniont, Nozahic ou encore Arnaud & Gourlay [4], [10], [25], [26], [28] qui ont choisi une mise en œuvre manuelle semblable à celle qui peut s'opérer sur chantier pour la mise en place du béton de chanvre banché. En revanche, les densités obtenues par Nguyen [27] s'écartent de la tendance. Ce dernier a mis en place ses éprouvettes par une très forte contrainte de compactage (pouvant aller jusqu'à 2MPa) maintenue pendant la cure. Cela s'est traduit par une densité de plus en plus élevée pour un ratio  $L/G$  restant relativement bas (Figure 1-24b).

La quantité d'eau à incorporer dans le béton de chanvre va dépendre du dosage en granulats dont le potentiel d'absorption d'eau est important. Ainsi, on constate que pour des bétons de chanvre à faible masse volumique donc à faible  $L/G$ , le dosage en eau devient important. Le ratio massique  $E/L$  varie d'environ 1 à 2 pour une masse volumique apparente à l'état sec décroissant de 500 à 250  $\text{kg.m}^{-3}$  (Figure 1-25a).

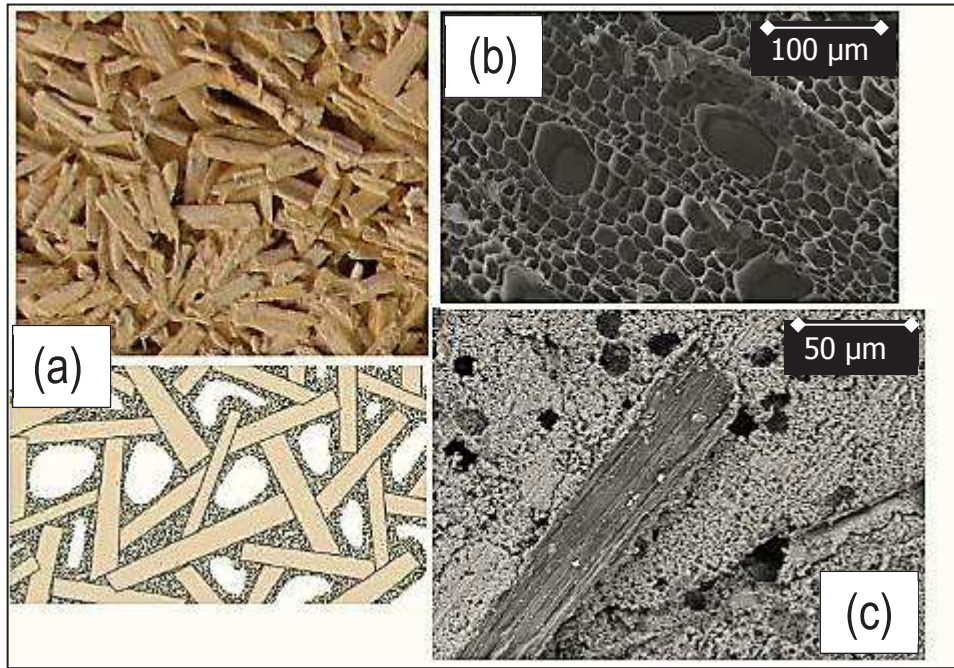


**Figure 1-25.** (a) Masse volumique apparente des bétons de chanvre à l'état sec en fonction du rapport Eau/Liant ( $E/L$ ) [4], [10], [25]–[28], [103], [104], (b) Cinétique de séchage des éprouvettes de béton de chanvre étudiées par Nguyen ( $\phi 10 \times 20 \text{ cm}^3$  conservées à  $20^\circ\text{C}$  – 75%HR) [27] et Nozahic (cubes  $15 \times 15 \times 15 \text{ cm}^3$  conservés à  $20^\circ\text{C}$  – 35%HR) [10] en fonction des dosages et de la contrainte de compactage

La cinétique de perte de masse des bétons de chanvre va dépendre de la mise en œuvre et notamment de l'intensité du compactage qui pilote le degré de porosité, du ratio E/L, des conditions de cure et de la géométrie des éprouvettes. La perte de masse des éprouvettes étudiées par Nguyen [27] en fonction du temps est reportée en Figure 1-25b. Selon Evrard [28], environ 90% de l'eau apportée au mélange est évaporée lors du séchage. Pour un ratio L/G donné, les résultats de Nguyen montrent bien que la diminution du ratio E/L engendre une perte de masse finale moins élevée. Il en est de même pour les formulations fortement compactées qui évacuent l'eau libre plus lentement (en raison de la plus faible porosité) mais pour lesquelles la perte de masse est plus faible, probablement en raison d'une évacuation d'eau importante lors du processus de compactage. Nguyen montre que les dosages en eau à utiliser sont plus faibles lorsque le compactage est élevé (Figure 1-25a). Par ailleurs, plus le dosage en granulats est important, plus la contrainte de compactage à appliquer est élevée. Nguyen parvient alors à obtenir des formulations fortement dosées en granulats, à faible E/L et fortement compactées pour lesquelles la perte de masse ne s'élève qu'à 10% après 90 jours de séchage (Figure 1-25b). Lorsque L/G est fort, le compactage est très faible et la perte de masse est bien plus importante ( $\approx 30\%$ ). Elle se rapproche d'avantage de la formulation L/G = 2 étudiée par Nozahic [10] (Figure 1-25b). Pour un compactage manuel faible, une perte de masse d'environ 40% est obtenue. Le séchage est plus rapide durant les premiers jours pour les échantillons de Nozahic, sûrement en raison de l'humidité relative de conservation (35%HR) bien plus faible que celle utilisée pour l'étude de Nguyen (75%HR). Il faut également prendre en compte la géométrie différente des éprouvettes.

## IV. 2. Propriétés hygrothermiques

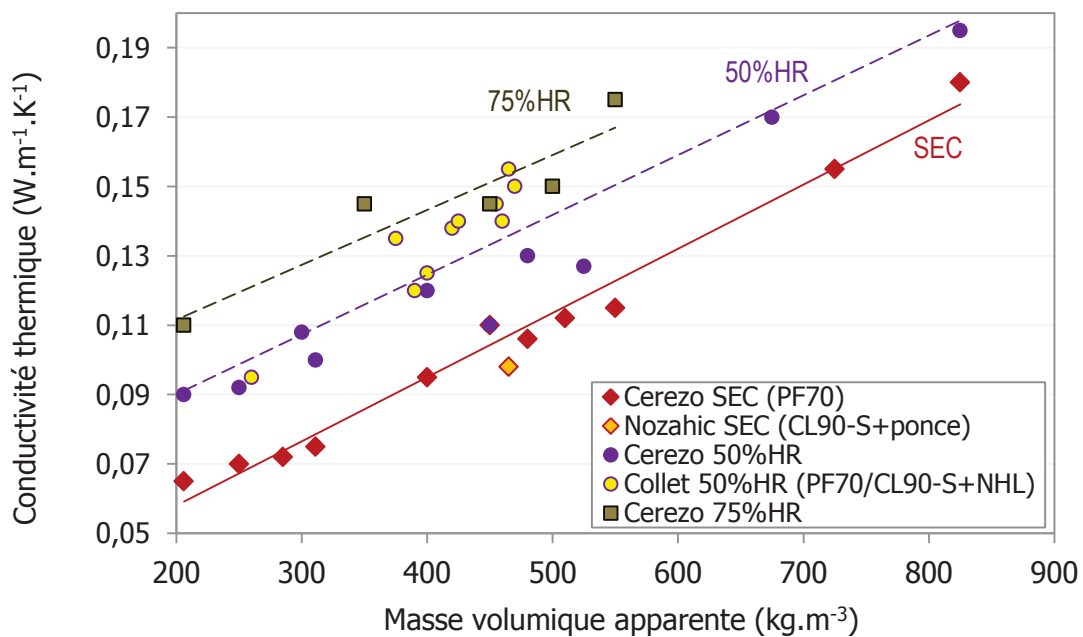
Le béton de chanvre présente une capacité de régulation hygrothermique intéressante en raison de sa forte porosité [5]. Les travaux de Glé et al. [50], [105], [106] insistent sur la triple porosité interconnectée du béton de chanvre comprenant la porosité inter-granulaire macroscopique (millimétrique), la porosité interne à la particule de chènevotte ( $\sim 10\ \mu\text{m}$ ) et la porosité du liant (10 nm à  $1\ \mu\text{m}$  en fonction du type de liant) (Figure 1-26). Selon Collet et al. [107], la porosité totale d'un béton de chanvre d'environ  $400\ \text{kg.m}^{-3}$  est de l'ordre de 76 à 78% avec une porosité ouverte d'environ 70%. Cette forte porosité permet non seulement de garantir une conductivité thermique faible en raison de la quantité d'air immobile emprisonnée mais également de favoriser le stockage et le transfert de l'humidité de l'air. Les matériaux poreux à porosité ouverte ont la capacité de fixer les molécules d'eau de l'air humide et de rejeter l'humidité lorsque l'air est plus sec [5]. Il s'agit d'une caractéristique essentielle des bétons de chanvre pour les échanges de vapeur entre l'intérieur et l'extérieur des bâtiments [10].



**Figure 1-26.** Triple porosité du béton de chanvre (a) Macroporosité inter-granulaire (b) Porosité intra-granulaire (c) Porosité du liant minéral [28], [34]

#### IV. 2. 1. Conductivité thermique

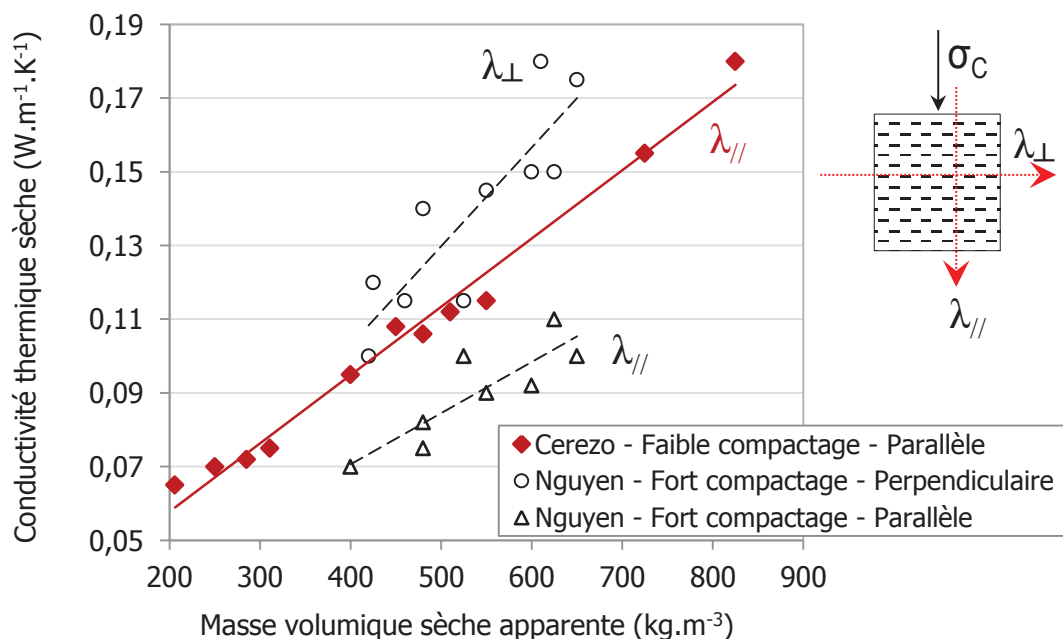
La conductivité thermique du béton de chanvre a fait l'objet de plusieurs études dont les résultats sont reportés en Figure 1-27. Elle varie typiquement entre 0,06 et 0,2  $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  en fonction de la formulation.



**Figure 1-27.** Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des bétons de chanvre à des humidités relatives différentes selon les auteurs [10], [26], [33]

La conductivité thermique des bétons de chanvre dépend évidemment des dosages en liant et en chènevotte. Elle varie linéairement avec la masse volumique apparente (i.e. avec le dosage en liant ou l'intensité du compactage). Elle est également affectée par la teneur en eau du béton de chanvre [5]. La Figure 1-27 montre en effet des niveaux de conductivité thermique plus élevés lorsque les bétons de chanvre sont stabilisés à des humidités relatives plus importantes. Ainsi les valeurs obtenues par Cerezo [26] et Nozahic [10] sur des bétons de chanvre à l'état sec ( $HR < 5\%$ ) permettent de tracer une première tendance linéaire en fonction de la densité des bétons. Cette tendance peut être reconstituée avec les valeurs de Cerezo et de Collet et al. [33] pour des bétons de chanvre stabilisés à 50%HR où l'on voit que la conductivité thermique est moins favorable. Les valeurs de Collet et al. restent un peu plus élevées que celles de Cerezo. Il est important de noter que la conductivité thermique est mesurée à l'aide de deux techniques différentes correspondant à la méthode de la plaque chaude gardée (NF EN 12667) ou à la méthode du fil chaud (NF EN ISO 8894). La méthode utilisée peut donc avoir une influence sur le résultat de la mesure. Les bétons de chanvre stabilisés à 75%HR ont une conductivité thermique encore plus élevée pouvant atteindre  $0,18 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  (Figure 1-27). Ces résultats sont liés à la conductivité thermique de l'eau qui est beaucoup plus élevée que celle de l'air.

La conductivité thermique est souvent mesurée dans le sens parallèle à la direction du compactage. Toutefois, Nguyen [27] a également mesuré la conductivité thermique dans le sens perpendiculaire. Ses résultats sont reportés en Figure 1-28.



**Figure 1-28.** Conductivité thermique à l'état sec en fonction de la masse volumique apparente selon que la mesure est effectuée parallèlement ou perpendiculairement au sens de compactage pour un compactage faible (Cerezo [26]) ou élevé (Nguyen [27])

La forte contrainte de compactage utilisée par Nguyen génère une anisotropie importante des éprouvettes puisque les particules de chènevotte ont tendance à s'orienter de manière perpendiculaire à la direction du compactage [27]. Les résultats obtenus par Nguyen dans les deux directions sont comparés avec ceux de l'étude de Cerezo pour laquelle la mise en œuvre s'effectue à compactage nettement plus faible (Figure 1-28). On peut voir que la conductivité thermique mesurée dans le sens parallèle au compactage selon Nguyen est plus favorable que celle obtenue selon le modèle linéaire de Cerezo tandis que l'effet contraire est constaté pour la conductivité thermique mesurée dans le sens perpendiculaire. Cela est dû à l'orientation préférentielle des particules parallélépipédiques du granulat de chènevotte dans le sens perpendiculaire à la direction du compactage (Figure 1-28). Le passage du flux de chaleur est alors plus favorisé lorsqu'il s'effectue dans le sens des capillaires longitudinaux de la chènevotte et inversement [27].

La conductivité thermique du béton de chanvre est comparée à celle d'autres matériaux de construction dans le Tableau 1-9. Sa valeur se situe entre celle de matériaux purement isolants comme les laines minérales et celle de matériaux porteurs isolants comme le béton cellulaire. Les bétons de chanvre constituent donc une très bonne alternative à des systèmes plus conventionnels en termes d'isolation thermique.

**Tableau 1-9.** Conductivité thermique de la formulation MUR du béton de chanvre comparée à celles de matériaux de construction usuels [28], [30], [108], [109]

| Matériaux de construction | Densité (kg.m <sup>-3</sup> ) | Conductivité thermique sèche (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ) |
|---------------------------|-------------------------------|--|
| Brique de terre cuite     | 1800                          | 0,6  |
| Béton cellulaire          | 450–1250                      | 0,12–0,23  |
| Béton de chanvre          | 400–500                       | 0,10–0,12  |
| Laine minérale            | 15–40                         | 0,03–0,045   |

#### IV. 2. 2. Valeur tampon hydrique (MBV : Moisture buffer value)

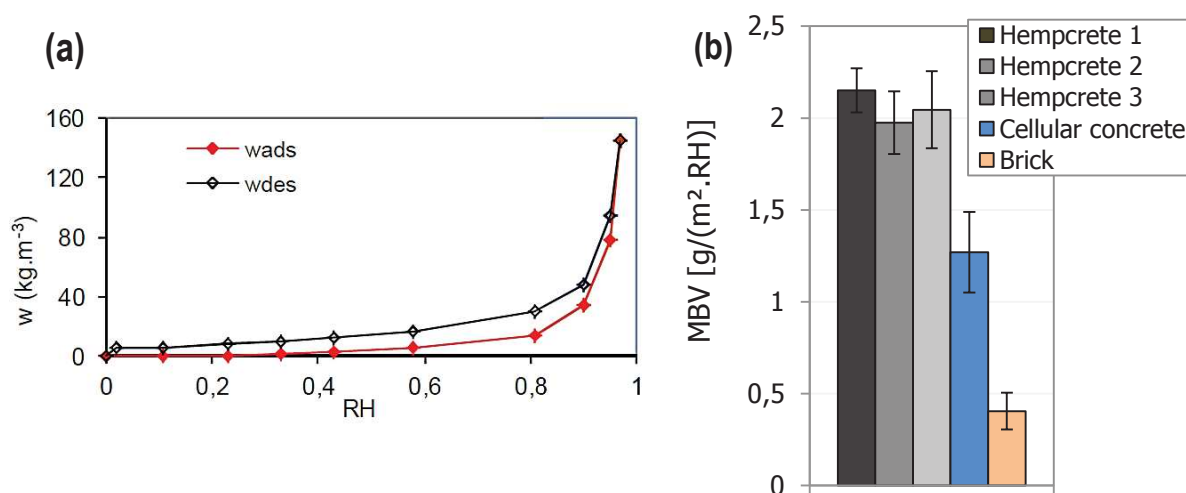
Le caractère hygroscopique du béton de chanvre peut être représenté par les isothermes de sorption/désorption qui indiquent la teneur en eau massique d'un échantillon en fonction du taux d'humidité relative de l'air ambiant (Figure 1-29a). Les isothermes à 23°C obtenues par Collet et al. [34] montrent que la teneur en eau massique du béton de chanvre évolue lentement puis augmente brusquement au-delà de 80%HR. La courbe de désorption suit une tendance identique avec un effet d'hystérésis. Ces phénomènes de sorption et désorption de la vapeur d'eau vont se traduire par une variation de la masse volumique apparente des bétons de chanvre en fonction des conditions hygrométriques.

Collet et al. [34], [110], [111] se sont notamment intéressés à mesurer la valeur tampon hydrique (MBV : Moisture Buffer Value) de différents bétons de chanvre. La MBV caractérise la capacité d'un matériau à modérer les variations d'humidité relative de l'air avoisinant. En pratique, des échantillons de bétons de chanvre initialement conservés à 23°C et 50%HR subissent des cycles d'humidité relative journaliers à savoir 8 heures en absorption à 75%HR et 16 heures en désorption à 33%HR. La MBV est calculée à partir de la variation de masse des échantillons ( $\Delta m$ ) et de la surface d'échange ( $A$ ) suivant l'expression suivante (Eq. 1-14) [110]:

$$MBV = \frac{\Delta m}{A \cdot (HR_h - HR_b)} \quad (\text{Eq. 1-14})$$

Où  $HR_h = 75\%HR$  et  $HR_b = 33\%HR$

Les résultats obtenus sont reportés en Figure 1-29b et comparés avec d'autres matériaux de construction isolants. La MBV des bétons de chanvre est de l'ordre de 2 g/m<sup>2</sup>.%HR pour une masse volumique apparente à 23°C et 50%HR comprise entre 400 et 470 kg.m<sup>-3</sup> [34], [110], [111]. Il apparaît également que le béton de chanvre se montre bien plus efficace que le béton cellulaire ou la brique pour réguler les variations de l'humidité (Figure 1-29b).



**Figure 1-29.** (a) Isothermes de sorption/désorption d'un échantillon de béton de chanvre [34] (b) Valeurs de MBV des bétons de chanvre, du béton cellulaire et de la brique [28], [34], [110], [111]

Il a été démontré que le béton de chanvre possède une grande perméabilité à la vapeur d'eau [28], [29]. Celle-ci serait semblable à celle du béton cellulaire selon Tran Le [29]. Cette propriété serait par ailleurs influencée par le liant utilisé. On sait par exemple que la chaux aérienne est nettement plus perméable à la vapeur d'eau que les liants hydrauliques [29].



Gourlay & Arnaud [112] ont mis en évidence les phénomènes d'évaporation-condensation de l'eau au sein du béton de chanvre soumis à des gradients de température et d'humidité relative. Le béton de chanvre se caractérise par des transferts liés aux effets conductifs et à des transferts d'eau par diffusion sous forme vapeur ou liquide. En conditions estivales, une forte hausse de température entraîne la vaporisation de l'eau liquide contenue dans les pores du béton de chanvre. Par conséquent, l'humidité relative au sein du matériau augmente et ce changement de phase s'accompagne d'une absorption d'énergie (endothermique), ce qui permet d'amortir considérablement la hausse de température. L'effet inverse se produit lors du passage en conditions hivernales. Le béton de chanvre est alors qualifié de « matériau à changement de phase naturel » [112]. Cette caractéristique procure une inertie thermique intéressante pour le béton de chanvre qui stocke la chaleur durant la journée et la restitue ensuite pendant la nuit. Par ailleurs, une température intérieure de 18°C en hiver permet de ressentir une sensation de chaleur plus importante avec un mur en béton de chanvre qu'avec un mur en béton conventionnel. Ceci est dû à l'effet dit de « paroi chaude » lui-même lié à la restitution d'énergie par condensation lorsque les températures extérieures sont faibles [10].

Les systèmes classiques associant blocs de béton creux et laine minérale peuvent être exposés à des problèmes de condensation. Par la différence de température entre l'intérieur et l'extérieur, la vapeur d'eau se condense dans les parois mais a tendance à rester bloquée dans les laines minérales qui peuvent subir d'importantes dégradations [109]. Cela oblige à surventiler pour évacuer l'air humide (déperditions de chauffage) et à chauffer davantage pour augmenter la capacité en eau de l'air. Ces pratiques ne favorisent évidemment pas les économies d'énergie. Le pare-vapeur ne résout pas forcément le problème car l'humidité se concentre autour des défauts d'étanchéité. La meilleure solution consiste donc à utiliser des matériaux perspirants (qui laissent passer la vapeur d'eau tout en préservant l'étanchéité à l'air). La grande capacité de régulation hygrothermique du béton de chanvre lui permet de faire face aux problèmes de condensation dans le bâtiment, de garantir le confort intérieur et de limiter fortement les besoins en chauffage et en climatisation [29]. Il peut constituer un matériau idéal pour optimiser l'enveloppe du bâtiment.

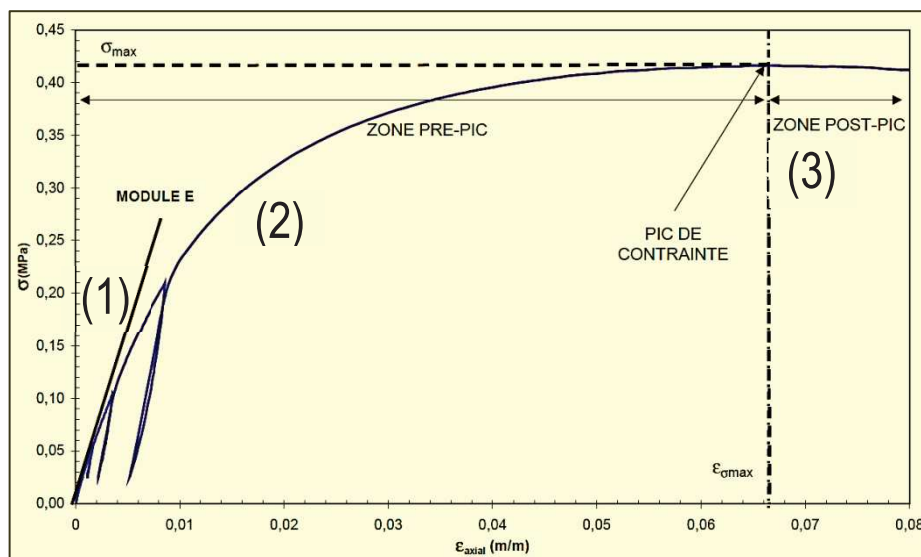
## IV. 3. Propriétés mécaniques

### IV. 3. 1. Comportement mécanique

Les performances mécaniques des bétons de chanvre sont influencées par de nombreux facteurs qui seront présentés dans ce paragraphe. Lorsqu'ils sont mis en œuvre avec une contrainte de compactage raisonnable comme c'est le cas dans les études de Cerezo [26] ou de Nozahic [10], la courbe contrainte-déformation obtenue en compression montre une



allure générale présentée en Figure 1-30. Pour une déformation inférieure à 1% ( $0 < \varepsilon < 0,01$ ), le béton de chanvre présente un comportement linéaire quasi-élastique [25], [26]. Durant cette phase (1), le liant supporte l'ensemble des contraintes de compression (Figure 1-30). Dans la phase (2), pour une déformation allant jusqu'à la contrainte maximale [ $0,01 < \varepsilon < \varepsilon(\sigma_{\max})$ ], la courbe s'infléchit et le comportement du béton de chanvre devient élastoplastique [25]. Le liant s'endommage progressivement et les concentrations de contrainte à l'interface liant-granulat deviennent de plus en plus importantes. Les efforts sont reportés sur les particules végétales caractérisées par une grande déformabilité. La résistance en compression (pic de contrainte) est ensuite atteinte pour des taux de déformation élevés (de 6 à 10% [25]). La zone post-pic est marquée par un plateau de ductilité résultant de l'aptitude à la compaction des granulats végétaux. Le liant, qui lui est plutôt fragile, ne joue plus aucun rôle (phase 3).



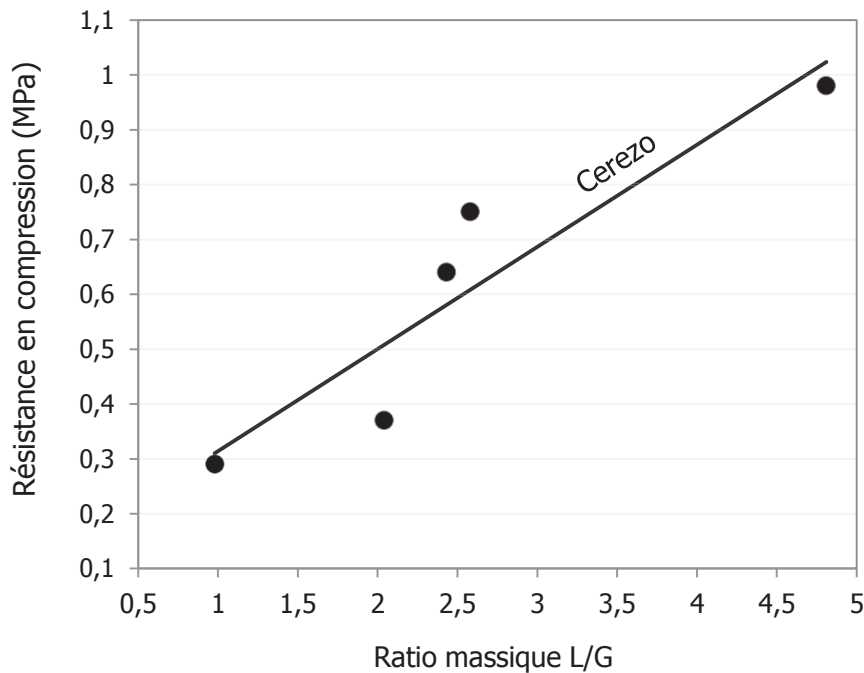
**Figure 1-30.** Allure typique de la courbe  $[\sigma = f(\varepsilon)]$  en compression d'éprouvettes cylindriques de bétons de chanvre faiblement compactés [26]

#### IV. 3. 1. Influence de la teneur en liant

Cerezo [26] a étudié l'évolution de la résistance en compression d'un béton de chanvre conservé 1 an à 20°C et 50%HR en fonction du dosage en liant. Elle a ainsi fait varier le ratio massique L/G de 0,98 à 4,81 lui permettant d'obtenir des bétons de chanvre dont la masse volumique apparente finale est comprise entre 250 et 660  $\text{kg.m}^{-3}$ . Le ratio massique E/L utilisé pour cette étude varie de 0,9 pour la formulation la plus fortement dosée en liant à 2,04 pour la formulation la plus fortement dosée en granulats. Le liant utilisé est le Tradical PF70 à base de chaux et de liants hydrauliques et pouzzolaniques. Les résultats montrent de

façon évidente que plus le dosage en liant est important, plus la résistance en compression est élevée (Figure 1-31). L'utilisation d'un faible dosage en granulats va toutefois se faire au détriment de la propriété d'isolation thermique. On peut considérer que le béton de chanvre formulé avec le ratio massique L/G le plus élevé (>4) commence à s'éloigner d'un agrobéton isolant selon la définition donnée par Nozahic [10].

Par ailleurs, le module élastique suit une tendance identique. Il varie de 4 à 160 MPa en fonction des dosages en liant reportés en Figure 1-31 [26].



**Figure 1-31.** Résistance en compression du béton de chanvre en fonction du ratio massique L/G selon Cerezo [26]

#### IV. 3. 2. Influence de la nature du liant

Plusieurs liants minéraux ont pu être utilisés pour la confection des bétons de chanvre. Il s'agit surtout de liants à base de chaux (chaux aérienne, chaux hydraulique, préformulation de chaux aérienne, de liants hydrauliques et pouzzolaniques). Arnaud et Gourlay [25] ont comparé les performances mécaniques de bétons de chanvre formulés avec différents liants à base de chaux (Tableau 1-10 & Figure 1-32). Ils obtiennent une résistance en compression un peu plus élevée avec la chaux NHL2 qu'avec la chaux NHL3.5 dont l'indice d'hydraulicité est pourtant plus élevé. Ce constat va dans le même sens que l'étude menée par Hirst et al. [113] ou encore Walker et Pavia [114] qui montrent que la résistance mécanique du liant utilisé (liée à son caractère hydraulique) n'est pas corrélée avec celle du béton de chanvre. Arnaud et Gourlay [25] obtiennent la résistance en compression à 28 jours la plus élevée avec la préformulation commerciale PF70 (Figure 1-32).

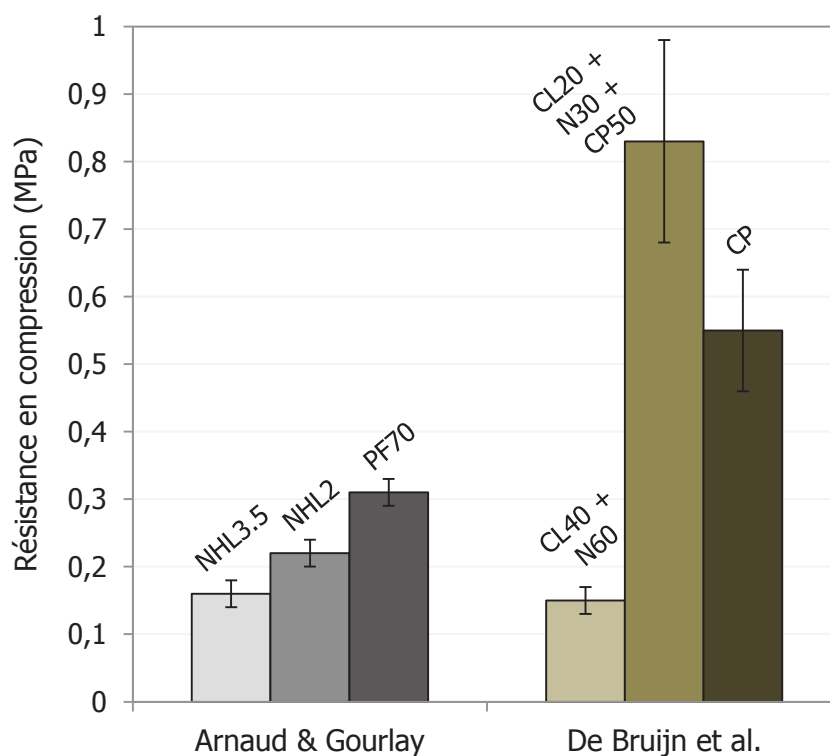
**Tableau 1-10.** Description des formulations étudiées par [25] et [101] et dont la résistance en compression est reportée en Figure 1-32

| Autres facteurs                         | Arnaud et Gourlay [25] | De Bruijn et al. [101]   |     |
|---|------------------------|--|-----|
| Conservation                            | 20°C – 50%HR           | >75%HR pendant 3 mois et 4,5%CO <sub>2</sub> /50%HR pendant 40 jours |     |
| Age                                     | 28 jours               | 18 semaines  |     |
| Densité apparente (kg.m <sup>-3</sup> ) | 460 – 480              | 600 – 730  |     |
| E/L                                     | 1,16 – 1,47            | 0,89 – 1,33  |     |
| L/G                                     | 2,4                    | <sup>a</sup> CL40+N60  | 3,3 |
|   |                        | <sup>b</sup> CL20+N30+CP50   | 3,6 |
|   |                        | <sup>c</sup> CP  | 4,5 |

<sup>a</sup> CL90-S (40%) + NHL5 (60%)

<sup>b</sup> CL90-S (20%) + NHL5 (30%) + Ciment Portland CEM II (50%)

<sup>c</sup> CEM II (100%)



**Figure 1-32.** Résistance en compression du béton de chanvre en fonction du liant utilisé [25], [101]

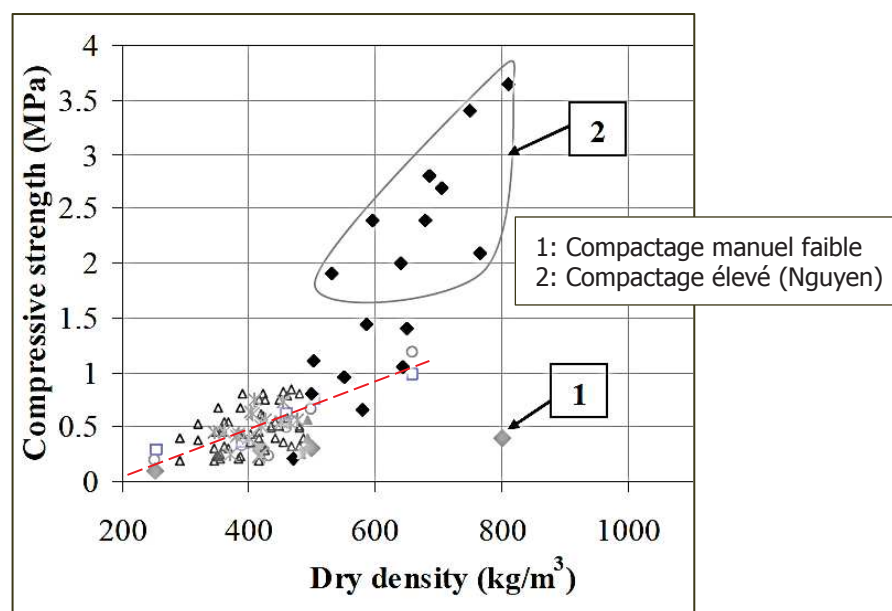
L'utilisation du ciment Portland pur a été très rapidement écartée par Cerezo [26] qui a constaté des défauts de prise très importants. Sur ses formulations fortement compactées, Nguyen [27] obtient la résistance en compression la plus faible lorsque le ciment Portland est utilisé en comparaison avec des bétons de chanvre à base de NHL2 ou de PF70. Les travaux de De Bruijn et al. [101] montrent toutefois des résultats divergents. Ces auteurs constatent

un gain de résistance mécanique très important lorsqu'ils substituent leur mélange de chaux aérienne CL90-S et de chaux hydraulique NHL5 par une certaine proportion de ciment Portland (Figure 1-32). En revanche, lorsqu'ils utilisent le ciment Portland pur, ce gain de résistance est plus faible. Ce résultat est d'autant plus marquant que le ratio massique L/G est plus élevé sur cette formulation (Tableau 1-10).

#### IV. 3. 3. Influence de l'intensité du compactage initial

Manh [104] a reporté les résultats de résistance en compression obtenus par plusieurs auteurs (Arnaud & Gourlay [25], Cerezo [26], Nozahic [10], Elfordy et al. [115], Magniont [4] et Nguyen [27]) en fonction de la densité apparente (Figure 1-33).

Les résultats obtenus par Nguyen se distinguent clairement de ceux des autres auteurs. Les bétons de chanvre fortement compactés utilisés par Nguyen sont caractérisés par une densité apparente à l'état sec allant de 500 à 800  $\text{kg.m}^{-3}$  et leur résistance en compression à 28 jours varie de 0,5 à presque 4  $\text{MPa}^6$ . Les bétons de chanvre étudiés par les autres auteurs ont une densité apparente qui se situe en très grande partie autour de 300–500  $\text{kg.m}^{-3}$ . Leur résistance en compression varie de 0,2 à 1  $\text{MPa}$  pour une densité allant de 250 à 800  $\text{kg.m}^{-3}$  selon le liant utilisé et sa concentration, les conditions de conservation et l'âge du béton. On voit aisément que pour une densité donnée, une contrainte de compactage élevée entraîne une forte augmentation de la résistance en compression. Cet effet est dû à la diminution importante de la macroporosité inter-granulaire [27].

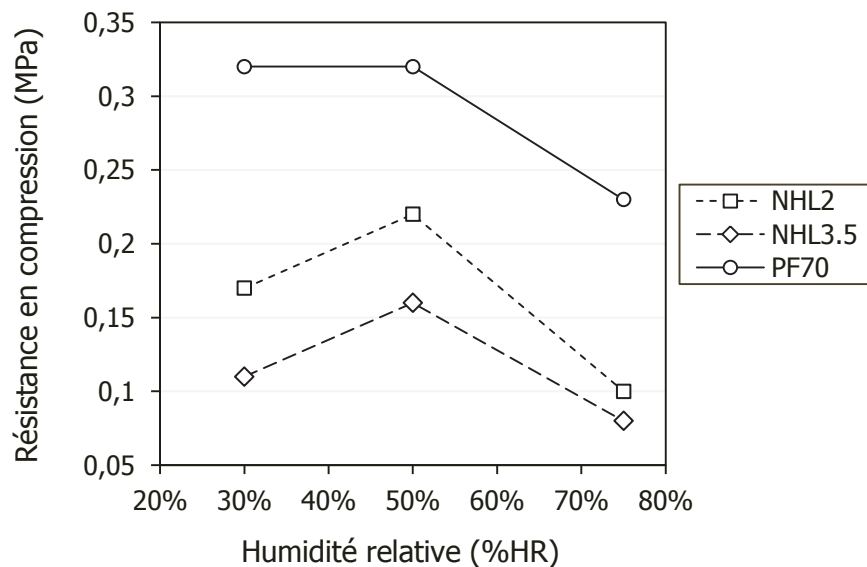


**Figure 1-33.** Résistance en compression en fonction de la densité selon la littérature [104]

<sup>6</sup> La résistance en compression donnée par Nguyen correspond à la contrainte obtenue à 7,5% de déformation

#### IV. 3. 4. Influence des conditions de cure

Les recherches menées par Arnaud et Gourlay [25] sont les seules qui se sont vraiment intéressées à l'influence des conditions d'humidité relative (30%HR–50%HR–75%HR) sur les performances mécaniques des bétons de chanvre à 28 jours. Pour les bétons de chanvre formulés à base de chaux hydraulique (NHL2 et NHL3.5), ces recherches montrent que la résistance en compression est la plus élevée lorsque la cure s'effectue à 50%HR. La conservation à humidité relative élevée (75%HR) mène systématiquement à la résistance en compression la plus faible quel que soit le liant utilisé (Figure 1-34). On imagine bien que la conservation à 30%HR est préjudiciable pour les réactions d'hydratation. En ce qui concerne la conservation à 75%HR, les auteurs supposent que la chute de résistance en compression à 28 jours est liée au ralentissement du processus de carbonatation en raison de l'état de saturation des pores empêchant la diffusion du  $\text{CO}_2$ .



**Figure 1-34.** Résistance en compression à 28 jours de la formulation MUR des bétons de chanvre en fonction du taux d'humidité relative durant la conservation [25]

On sait que les mécanismes de durcissement des liants minéraux (et par conséquent le développement de leur résistance mécanique) sont fortement liés aux conditions de cure à savoir l'humidité relative mais également la température de cure ou encore le pourcentage de  $\text{CO}_2$  (notamment pour les liants à base de chaux). A notre connaissance, il n'existe pas de travaux de recherche à propos de l'effet de la température sur la résistance mécanique des bétons de chanvre. L'exposition des bétons de chanvre à une atmosphère riche en  $\text{CO}_2$  n'a été que très brièvement abordée par Chamoin [5] qui conclut que la densité, la profondeur de carbonatation et la résistance mécanique de ses bétons de chanvre ne sont que très peu influencés par la cure en enceinte de carbonatation accélérée. On remarque toutefois que

l'auteur stocke ses échantillons dans l'enceinte régulée à 95%HR. Ce taux d'humidité relative est beaucoup trop élevé pour permettre la carbonatation des échantillons. Enfin, De Bruijn et al. [101] conservent leurs échantillons dans une enceinte à 4,5% de CO<sub>2</sub> et 50%HR après 12 semaines de cure humide (HR>75%), ce qui complexifie lourdement les interprétations. De plus, leurs résultats ne sont pas comparés avec une conservation standard.

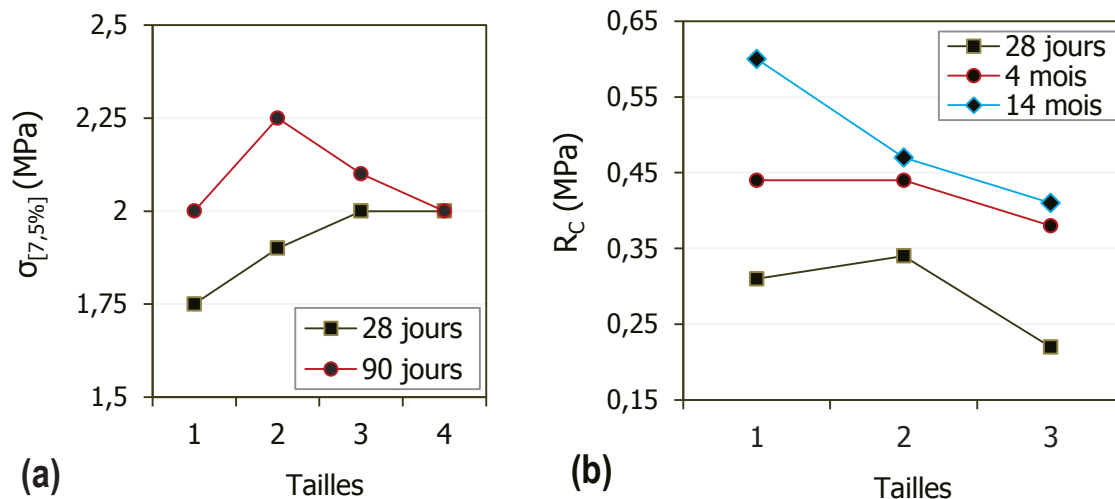
#### IV. 3. 5. Influence de la taille des granulats

Certaines études se sont penchées sur l'influence de la distribution granulométrique des chènèvettes sur les performances mécaniques finales des bétons de chanvre. Les travaux de Nguyen [27] ainsi que ceux d'Arnaud et Gourlay [25] évaluent cet effet sur une formulation de type mur (L/G = 2) à base de liant PF70. Nguyen montre que la contrainte exercée à 7,5% de déformation ( $\sigma_{7,5\%}$ ) augmente avec la taille du granulat pour les essais réalisés à 28 jours (Figure 1-35a). Ce phénomène est attribué à un meilleur recouvrement des particules végétales par le liant. L'augmentation de la taille du granulat induirait une diminution de sa surface spécifique et par conséquent un meilleur enrobage des granulats par la pâte de liant. Arnaud et Gourlay ont étudié des tailles granulométriques plus élevées et ont permis ainsi de compléter les résultats de Nguyen. Il semblerait donc que les performances mécaniques des bétons de chanvre à 28 jours soient favorisées lorsque la longueur moyenne du granulat de chènèvettes est comprise entre 4 et 7–8 mm (Figure 1-35). Pour des échéances plus longues (14 mois), Arnaud et Gourlay constatent que la résistance en compression est la plus élevée pour la taille 1 ( $\approx 3$  mm)(Figure 1-35b) qui est également celle qui favorise la résistance mécanique des bétons de chanvre de Nguyen (taille 2)(Figure 1-35a).

Ces résultats semblent indiquer que l'influence de la taille du granulat de chènèvettes est liée au réseau macroporeux généré par l'arrangement granulaire. La granulométrie la plus grossière utilisée par Arnaud et Gourlay (taille 3 en Figure 1-35b) joue en défaveur de la résistance mécanique en raison de la porosité inter-granulaire importante. Par ailleurs, l'effet de cette grande porosité sur la carbonatation après 28 jours de cure est certainement limité. A plus long terme (14 mois), la granulométrie la plus fine étudiée par Arnaud et Gourlay (taille 1 en Figure 1-35b) permet au béton de chanvre de bénéficier à la fois d'une bonne compacité du mélange et de l'effet de la carbonatation. Cette dernière est probablement plus avancée sur les bétons de chanvre formulés avec les granulométries plus grossières (taille 3 en Figure 1-35b) mais ne permet pas de compenser l'effet de la plus faible compacité. Cette interprétation est valable en considérant la forme parallélépipédique et élancée du granulat.

Les résultats obtenus par Nguyen après 90 jours de cure (Figure 1-35a) sont toutefois plus complexes à interpréter. Il faut préciser que le liant et les dosages utilisés pour les deux études sont identiques mais la méthode de mise en œuvre est différente (compactage). De

plus, les bétons de chanvre étudiés par Nguyen sont conservés à 75%HR tandis que ceux d'Arnaud et Gourlay sont conservés à 50%HR. Nguyen utilise également un rapport E/L plus faible. Ces paramètres ont une influence sur le processus de carbonatation aérienne qui est sûrement impacté par la taille du granulat.



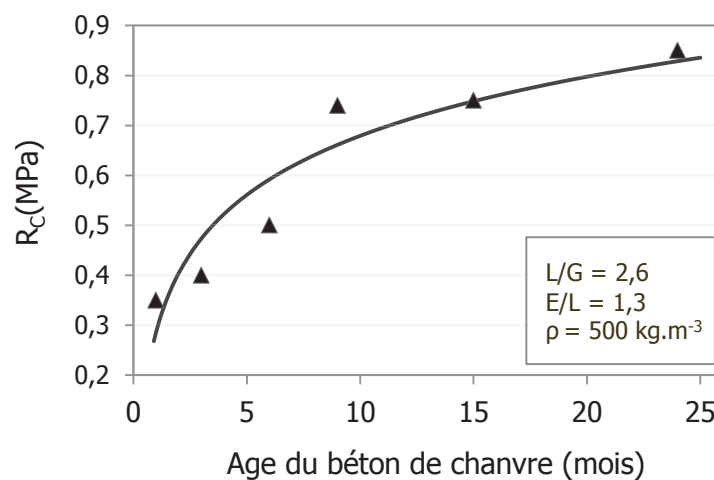
**Figure 1-35.** Influence de tailles granulométriques croissantes sur les performances mécaniques de bétons de chanvre

(a) Nguyen [27] longueur moyenne : 1 = 1,9 mm ; 2 = 2,8 mm ; 3 = 4 mm ; 4 > 5 mm

(b) Arnaud et Gourlay [25] longueur moyenne : 1 = 3,1 mm ; 2 = 7,6 mm ; 3 = 8,9 mm

#### IV. 3. 6. Age du béton

Arnaud & Gourlay [25] ont suivi l'évolution temporelle de la résistance en compression d'un béton de chanvre formulé à base du liant Tradical PF70 (Figure 1-36).



**Figure 1-36.** Evolution temporelle de la résistance en compression d'un béton de chanvre à base du liant PF70 en formulation type MUR selon Arnaud et Gourlay [25]



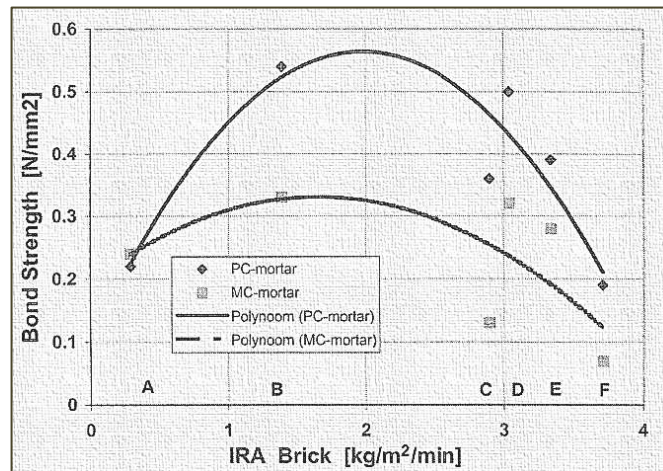
La résistance en compression est passée de 0,35 MPa à 21 jours à 0,85 MPa après 24 mois de cure à 20°C et 50%HR. Ce gain en résistance mécanique est attribué à la cinétique de durcissement très lente liée au processus de carbonatation de la chaux. Le liant jouerait donc un rôle de plus en plus prépondérant en fonction du temps [25].

#### IV. 3. 7. Pathologies liées aux interactions liant/végétal

##### IV. 3. 7. 1 Gestion des transferts hydriques

Il a été vu que le caractère poreux et hydrophile de la chènevotte est responsable d'un fort coefficient d'absorption d'eau. Lorsque les particules végétales sont en contact avec l'eau de gâchage, elles risquent donc d'absorber cette eau dans leurs capillaires et de perturber la prise des liants hydrauliques [10], [104]. Cette compétition semble être à l'origine du farinage observé par Cerezo à cœur des bétons de chanvre formulés à base de ciment Portland [26]. Nous avons vu toutefois que certains travaux ont pu montrer que l'utilisation d'une certaine proportion de ciment dans le liant peut être tout à fait bénéfique au développement de la résistance mécanique après 28 jours [100], [101]. Il n'existe donc pas vraiment de consensus vis-à-vis du liant à utiliser [10]. Néanmoins, de très nombreux auteurs préconisent l'utilisation de liants à fort pouvoir de carbonatation, notamment à base de chaux aérienne. Ils espèrent de cette manière obtenir une certaine profondeur de carbonatation apportant une enveloppe rigide au matériau. La chaux aérienne étant souvent combinée à des liants hydrauliques et pouzzolaniques, plusieurs chercheurs ont recours à un prémouillage préalable des granulats végétaux pour éviter ensuite le manque d'eau pour les réactions d'hydratation [10], [26], [27]. Monreal et al. [116] définissent la quantité d'eau de prémouillage en fonction du coefficient d'absorption d'eau des pulpes de betterave.

La capacité d'absorption d'eau du granulat végétal influe également l'adhésion entre la particule végétale et le liant minéral. Nozahic [10] fait notamment une analogie entre des granulats lignocellulosiques et un support poreux sur lequel est appliqué un mortier. Les travaux de Groot & Larbi [117] montrent qu'il existe un taux d'absorption initial optimal du support poreux pour une force d'adhésion optimale à l'interface mortier/support (voir Figure 1-37). Lorsque l'absorption d'eau du support est très faible (support peu poreux), le risque de stagnation d'eau à l'interface devient assez élevé et la porosité au voisinage du support est importante. Une mauvaise interpénétration du mortier avec son support est également incriminée. Inversement, une absorption d'eau élevée du support poreux peut entraîner des conditions d'hydratation assez défavorables dans la zone d'interface. Une absorption d'eau minimale reste bénéfique car elle favorise le transport de particules fines du mortier vers la surface du support et leur densification lors du durcissement [10], [117].

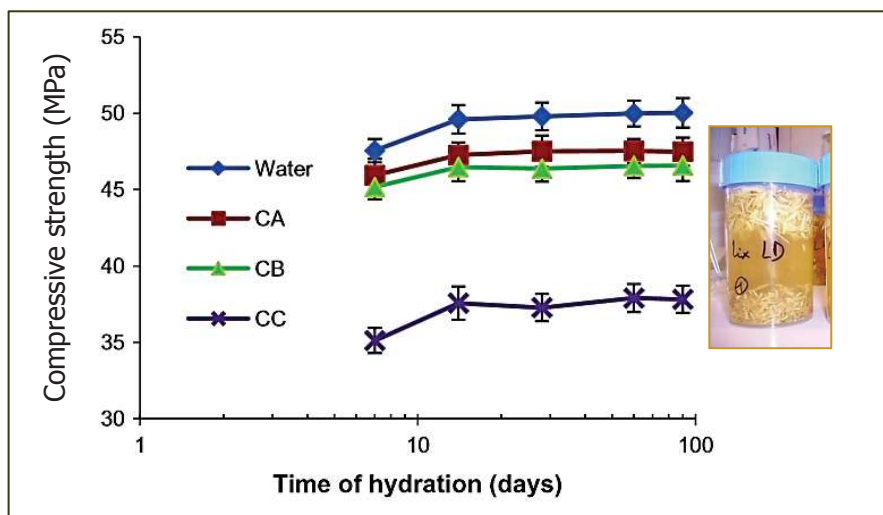


**Figure 1-37.** Force d'adhésion d'un mortier sur un substrat poreux en fonction du taux d'absorption du support (brique) [117]

#### IV. 3. 7. 2 Solubilisation des extractibles végétaux

Les mécanismes de prise et de durcissement des liants minéraux peuvent être perturbés par la présence de polysaccharides extraits de la paroi lignocellulosique. Les sucres, les pectines, les hémicelluloses et les produits de dégradation issus de l'attaque alcaline de ces espèces solubilisées (comme les acides carboxyliques) sont connus pour induire un effet retard sur l'hydratation du ciment Portland [42]. Les pectines ont notamment la particularité de piéger les ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) ce qui peut entraîner ensuite un manque de disponibilité de ces ions pour permettre les mécanismes de dissolution/précipitation lors de l'hydratation des liants silico-calciques [16], [118]. Les études menées concernent principalement l'effet retard des extractibles végétaux sur la prise du ciment Portland. Les travaux de Peschard et al. [119], [120] montrent par exemple que les polysaccharides retardent l'hydratation des  $\text{C}_3\text{A}$  en perturbant davantage la croissance que la nucléation des C-S-H. Ils supposent que les hydrates de carbone (sucres) viennent s'adsorber sur la première couche d'hydrates formant ainsi une couche imperméable autour du grain partiellement hydraté. Les travaux de thèse de Sedan [16] portant sur les interactions fibres de chanvre/liant cimentaire concluent que les retards de prise provoqués par la décomposition de la fibre en milieu alcalin ( $\text{pH} > 12$ ) sont particulièrement complexes et parfois contradictoires. Ces interactions sont influencées par la composition chimique des fibres qui dépend des conditions de récolte, du lieu de culture ou encore du degré de maturation de la plante [16], [118]. Selon Sedan [16], la complexation des ions calcium avec les molécules organiques est un paramètre déterminant pour expliquer l'inhibition de la prise (formation des C-S-H) de composites à base de ciment et de fibres de chanvre (très riches en pectine). Plus récemment, un travail collaboratif entre l'ENTPE de Lyon et l'INRA/Université de Reims a permis de mettre en évidence l'effet des polysaccharides solubilisés par le granulats de chènevotte sur la prise et le développement de

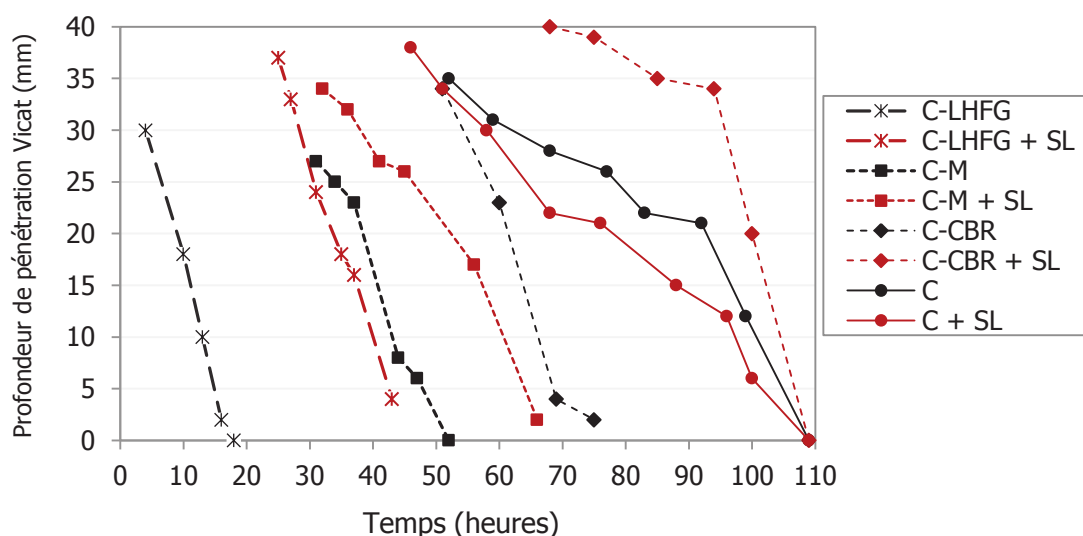
la résistance mécanique du ciment Portland. Dans ce travail, Diquélou et al. [35] utilisent une solution de lixiviation issue de l'immersion de la chènevotte dans l'eau durant 24 heures comme eau de gâchage pour formuler des pâtes de ciment Portland CEM I. Ils étudient l'effet de trois chènevottes différentes et montrent que l'une d'entre elles retarde le début de prise de plus de 5 heures à l'aide d'un essai de pénétration à l'aiguille Vicat [35]. Par ailleurs, les extraits de chènevotte entraînent non seulement un retard de prise mais se caractérisent également par une perturbation durable du processus de durcissement se traduisant par une chute définitive de la résistance mécanique des pâtes de ciment (Figure 1-38). La solution de lixiviation ayant entraîné l'effet retard le plus important est responsable d'une chute de la résistance en compression du ciment de l'ordre de 25% (Figure 1-38). Les résultats de Diquélou et al. [35] montrent aussi que la nature et l'origine de la chènevotte (qui pilotent la composition chimique) ont une influence considérable sur l'effet inhibiteur des substances solubilisées et dégradées.



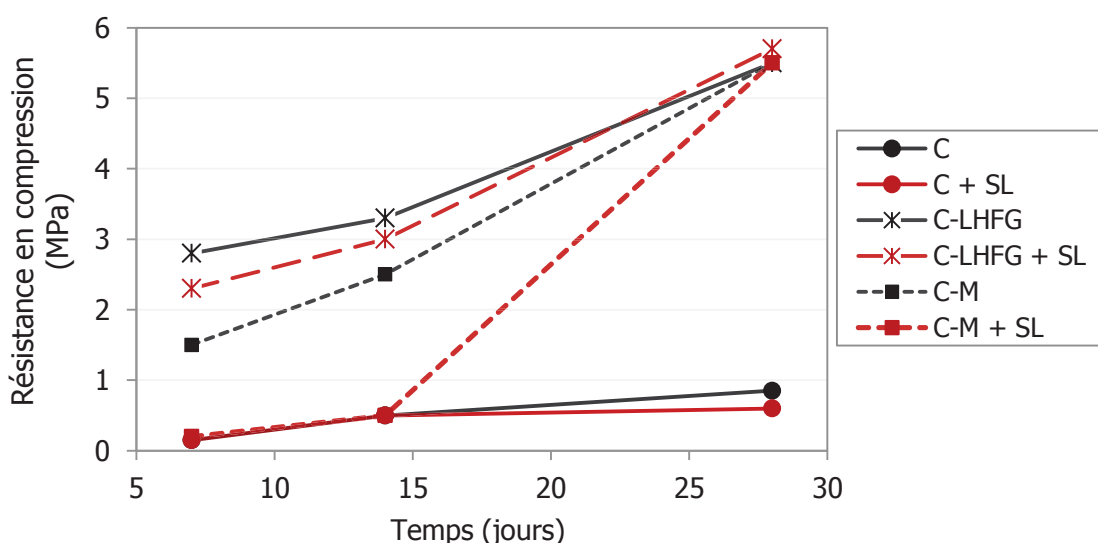
**Figure 1-38.** Développement de la résistance en compression de pâtes de ciment pur (Water) ou formulées avec la solution de lixiviation des chènevottes (CA/CB/CC) [35]

Le même type d'étude a été mené par Walker et Pavia [118] mais avec des liants à base de chaux et de composés pouzzolaniques. Les auteurs couplent également le test à l'aiguille Vicat et le suivi de la résistance en compression de pâtes pures avec ou sans extraits de chènevotte à l'eau pour évaluer l'effet retard et inhibiteur. Selon Dupraz et al. [121], les acides carboxyliques inhibent les mécanismes de précipitation du carbonate de calcium. Walker et Pavia [118] montrent toutefois que le temps de durcissement (Figure 1-39) et la résistance mécanique des pâtes de chaux aérienne (Figure 1-40) ne sont pas impactés par les extraits issus du granulat de chènevotte et concluent que les mécanismes de floculation et de carbonatation de la chaux ne sont pas perturbés par la présence des polysaccharides.

En revanche, ils constatent que le développement des C-S-H de type II (pouzzolaniques) est retardé ce qui se traduit bien par une résistance en compression plus faible au jeune âge en particulier pour les pâtes chaux-métakaolin (Figure 1-40). Ce retard est cependant rattrapé puisque la résistance en compression à 28 jours est au final identique que les pâtes soient formulées à l'eau pure ou avec les extraits végétaux. L'effet inhibiteur obtenu sur le ciment Portland par Diquélou et al. [35] n'est donc pas valable pour les liants chaux-pouzzolane étudiés par Walker et Pavia [118].



**Figure 1-39.** Temps de prise par pénétration à l'aiguille Vicat  
Pâtes de chaux aérienne (C), chaux-laitiers de haut fourneaux granulés (C-LHFG), chaux-métakaolin (C-M), chaux-cendres de balles de riz (C-CBR) formulées avec une eau de gâchage pure ou avec une solution de lixiviation de la chènevotte dans l'eau (SL) pendant 45 minutes [118]



**Figure 1-40.** Résistance en compression des pâtes de chaux pure et chaux/pouzzolane suivant la présence des extraits de chènevotte (SL) [118]

On note que les deux études précédemment reportées ont investigué l'effet de solutions de lixiviation issues de l'immersion de la chènevotte dans l'eau pure. Pour modéliser l'effet du milieu interstitiel réel du béton de chanvre, il serait intéressant d'immerger la chènevotte dans l'eau de chaux saturée. Néanmoins, cette façon de procéder ne serait pas sans poser problème car la pré-complexation des ions  $\text{Ca}^{2+}$  avec les extraits végétaux dans la solution de lixiviation pourrait limiter celle qui est escomptée lors du gâchage de la pâte.

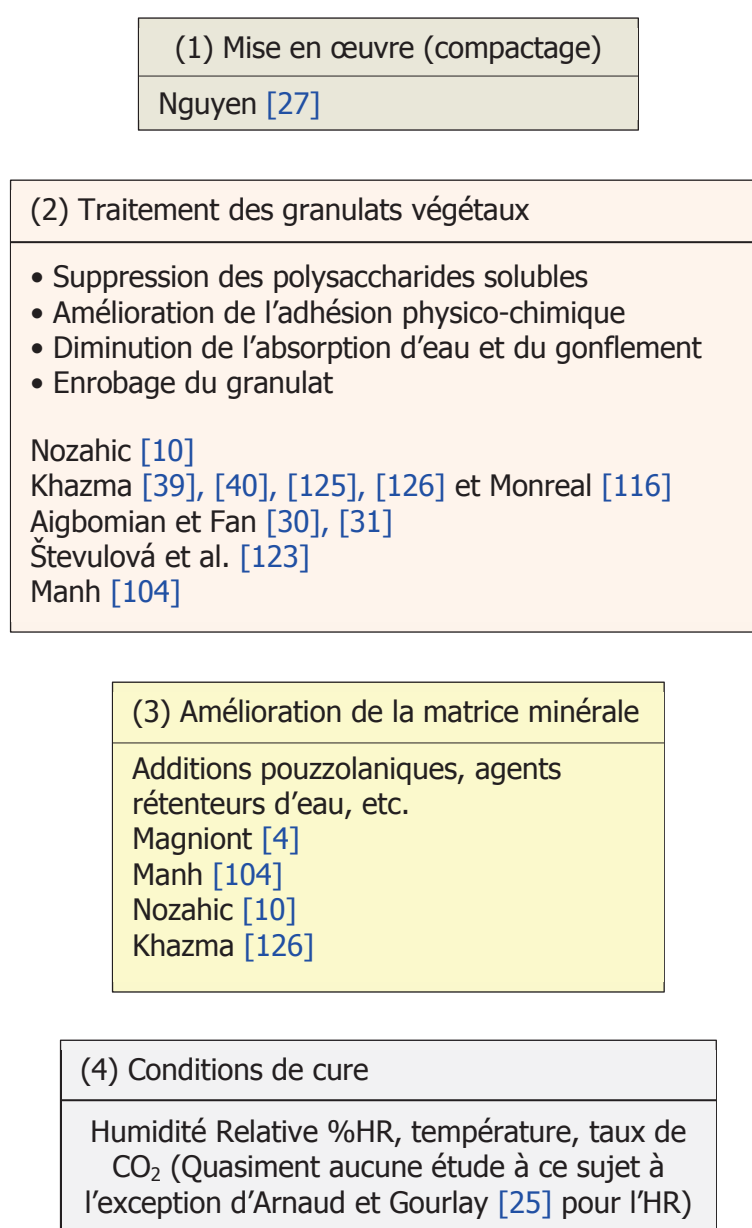
#### IV. 3. 7. 3 Vers des agrobétons à performances améliorées

Les bétons de chanvre sont utilisés comme bétons de remplissage et sont associés à une structure porteuse, souvent en bois. Ces matériaux ne sont pas porteurs en raison de leur très faible résistance en compression. Pour une mise en œuvre type « banchage » (in-situ) où le compactage est plutôt faible, la résistance en compression des bétons de chanvre excède très rarement 0,5 MPa après 60 jours de prise. Cette résistance en compression fait cependant l'objet d'une variabilité relativement importante en fonction de nombreux facteurs qui ont été exposés dans ce chapitre bibliographique. Les bétons de chanvre sont avant tout conçus pour optimiser l'enveloppe hygrothermique du bâti et à ce titre les nombreux travaux menés par l'équipe de Collet et al. [33], [34], [107], [110], [111] à l'Université de Rennes I ou encore les travaux de thèse de Tran Le [29] apportent des éléments solides sur la qualité de ce matériau. Pour autant, les propriétés mécaniques faibles des agrobétons doivent également attirer toute l'attention des chercheurs car elles sont en partie responsables de l'utilisation marginale de ce type de matériau. Les bétons de chanvre sont principalement utilisés dans le secteur de la construction individuelle où les reports de charges sont très raisonnables. L'amélioration des caractéristiques mécaniques des bétons de chanvre dans l'objectif d'obtenir une résistance en compression avoisinant 2–3 MPa revêt une importance capitale. Elle permet de s'orienter vers la confection de bétons de chanvre pouvant être qualifiés de semi-porteurs et de favoriser la manutention de blocs préfabriqués.

Dans un domaine plus vaste englobant les composites à base de fibres et de granulats végétaux, de très nombreuses études portent sur l'influence de différents traitements des charges végétales avant leur incorporation dans une matrice cimentaire. On peut notamment évoquer le cas des composites bois/ciment [122] ou encore les travaux de Le Troëdec et al. [17]–[19] à propos de composites à base de chaux et de fibres de chanvre. Les particules végétales sont par exemple exposées à une lixiviation préalable dans l'eau bouillante ou dans des solutions alcalines de type soude  $\text{Na}(\text{OH})$  ou eau de chaux  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ . Ces traitements visent à solubiliser les extractibles potentiellement gênants, à modifier l'état de surface ou encore le caractère hygroscopique des particules végétales [10]. Leur effet dépend toutefois de certains paramètres comme la concentration de la solution ou le temps d'immersion des fibres et granulats. De ce fait, une variabilité de résultats assez importante est constatée. Le

Troëdec et al. [18] montrent par exemple que le traitement des fibres de chanvre à la soude permet d'améliorer les caractéristiques mécaniques de composites chaux/fibre de chanvre.

En ce qui concerne plus spécifiquement les agrobétons à base de chènevotte (les bétons de chanvre), les recherches menées pour augmenter leur résistance en compression à court terme (i.e. après 28 jours) se sont principalement orientées sur le mode de mise en œuvre, le traitement des granulats végétaux ou l'emploi d'additions minérales et d'adjuvants (Figure 1-41). Par ailleurs, le recours à des conditions de cure particulières reste une piste à étudier dans le cadre de la préfabrication. Cet aspect n'a pourtant pas été réellement abordé dans la littérature.



**Figure 1-41.** Voies d'amélioration des agrobétons type bétons de chanvre



Nous avons vu que Nguyen [27] a évalué l'effet d'une contrainte de compactage élevée lors de la mise en œuvre de ses bétons. Ce procédé mène effectivement à l'obtention d'un agrobéton chaux-chanvre fortement stratifié et plus résistant mécaniquement. Il va toutefois entraîner une augmentation relativement importante de la densité apparente des bétons et risque de modifier leur comportement hygrothermique.

Nozahic [10] ainsi que Številová et al. [123], [124] ont étudié l'effet d'un traitement des granulats à l'eau de chaux  $\text{Ca(OH)}_2$ . Les investigations menées par Nozahic mettent en avant une adhésion particule/liant améliorée suite à ce traitement. Pourtant, il observe ensuite une diminution de la résistance mécanique des bétons lorsqu'ils incorporent la chènevotte traitée. Številová et al. obtiennent le même résultat en utilisant pourtant un liant et des dosages totalement différents (Tableau 1-11). De plus, Številová et al. ont également étudié l'effet de traitements à la soude ou à l'EDTA et ont obtenu de la même façon une diminution de la performance mécanique des composites à base de chènevotte par rapport à la référence (Tableau 1-11). Ces résultats sont opposés à ceux de Le Troëdec et al. [18] qui choisissent le même type de traitement mais sur la fibre périphérique du chanvre. Le traitement à la soude est toutefois à prendre avec grande précaution. Les travaux d'Aigbomian et Fan [30], [31] se proposent d'étudier l'effet d'un traitement  $\text{Na(OH)}$  sur les propriétés mécaniques en compression d'agrobétons à base de chaux et de sciures de bois. Ils montrent qu'il existe un optimum en fonction de la concentration de la solution mais aussi du temps pendant lequel les sciures sont immergées dans la solution. Le traitement des sciures dans une solution bouillante à 4% de  $\text{Na(OH)}$  pendant 140 minutes a mené à une résistance en compression presque trois fois plus élevée que la référence (Tableau 1-11).

Parmi les traitements opérés sur les particules végétales, une autre voie envisagée est celle du recouvrement par une substance généralement hydrophobante. L'enrobage par une huile de lin a été investigué par Nozahic [10] sur la chènevotte et par Khazma et al. [125] sur des anas de lin valorisés comme granulats pour la confection d'agrobétons. Les auteurs constatent une diminution de 25 à 50% du coefficient d'absorption d'eau des granulats après l'enrobage. En revanche, Nozahic reporte une diminution de la résistance en compression suite au traitement à l'huile de lin qu'il attribue à une mauvaise mouillabilité du granulat par le liquide interstitiel suite à son hydrophobisation (Tableau 1-11). A l'inverse, Khazma et al. [125] constatent que la résistance en compression passe de 0,39 MPa à 3,8 MPa lorsque les granulats sont traités à l'huile de lin selon un ratio massique huile de lin/granulats égal à 2 (Tableau 1-11). L'enrobage entraîne toutefois une augmentation de la masse volumique des composites étudiés par Khazma qui est de l'ordre de  $730 \text{ kg.m}^{-3}$  lorsque les granulats sont traités tandis qu'elle est de  $580 \text{ kg.m}^{-3}$  pour les bétons incorporant les granulats non traités. Ceci est lié à une augmentation de la masse volumique des anas de lin suite au traitement (passant de  $125 \text{ kg.m}^{-3}$  à  $190 \text{ kg.m}^{-3}$ ) [125]. Il paraît nécessaire de rappeler que les bétons

étudiés par Khazma sont à base de ciment Portland et à plus faible teneur en granulats que les bétons étudiés par Nozahic. La ressource végétale est différente et les conditions de cure également (Tableau 1-11). Khazma et al. utilisent d'autres procédés de recouvrement pour limiter le relargage de substances hydrosolubles dans la matrice et l'absorption d'eau. Ils étudient l'effet d'un recouvrement par une substance à base de pectine/polyéthylène-imine [39] ou encore par un élastomère à base de polyéthylène glycol [40]. Si la première molécule s'avère assez peu efficace (la résistance en compression augmente peu en rapport à l'augmentation de la densité), la seconde permet en revanche d'obtenir une résistance en compression passant de 0,34 à 3 MPa pour une densité apparente du béton passant de 580 à 650 kg.m<sup>-3</sup>. Il est important de préciser que ce traitement engendre une augmentation de la conductivité thermique des composites passant de 0,1 à 0,2 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> [40]. Enfin, Khazma et al. [126] ont obtenus des résultats intéressants suite à l'enrobage préalable des anas de lin avec un mélange ciment/saccharose qui a permis d'améliorer nettement la résistance en compression malgré une augmentation importante de la densité apparente des bétons (passant de 580 kg.m<sup>-3</sup> à 830 kg.m<sup>-3</sup>) (Tableau 1-11). Ce dernier traitement rejoint finalement les travaux de Manh [104]. Ce dernier a travaillé sur des bétons de chanvre à base d'un liant pouzzolanique innovant développé par le LMDC (Université de Toulouse III). Ce liant est à base de NHL3.5 ou de CL90-S avec du métakaolin et un certain nombre d'adjuvants (carbonate de glycérol, sulfate de potassium, superplastifiant) [104]. Dans cette étude, les bétons de chanvre sont mis en œuvre par vibrocompression selon une contrainte de compactage égale à 0,6 MPa et sans maintien de précharge durant le durcissement. Manh obtient ainsi un béton de référence possédant déjà une résistance à la compression de 0,65 MPa après 28 jours de cure à 65%HR (Tableau 1-11). Il utilise ensuite un prétraitement des granulats de chènevotte par un mélange d'eau et de liant qui sera utilisé pour la fabrication. Il considère ensuite deux façons de procéder. La première consiste à conserver la chènevotte 2 jours dans un sac étanche suite à ce prétraitement et la deuxième à conserver la chènevotte à l'air libre sur un support étanche pendant 2 jours [104]. Ces granulats prétraités par le liant sont ensuite utilisés pour la fabrication des éprouvettes. Ces procédés permettent d'obtenir une résistance en compression allant de 0,8 à 1,1 MPa avec davantage d'efficacité lorsque la chènevotte prétraitée est conservée à l'air libre [104] (Tableau 1-11).

En ce qui concerne l'emploi d'adjuvants spécifiques dans la matrice minérale des bétons végétaux, on peut évidemment citer les travaux de thèse de Nozahic [10]. Ce dernier a utilisé un agent viscosant et rétenteur d'eau de type éther de cellulose (MHEC). Son usage permet de limiter fortement les transferts hydriques et de polysaccharides entre le liant minéral et les granulats végétaux se traduisant par une cohésion accrue des granulats avec le liant. Nozahic a ainsi pu obtenir des résistances en compression avoisinant 2 MPa sur des

bétons de chanvre conservant une masse volumique apparente inférieure à 500 kg.m<sup>-3</sup> et une conductivité thermique restant équivalente à celle obtenue sans utiliser le MHEC [10].

**Tableau 1-11.** Récapitulatif des formulations obtenues par plusieurs études en comparant le béton de référence (R) et le béton obtenu après un procédé visant à améliorer les propriétés mécaniques (P)

| Auteur(s)   | Granulats        | Liants   | Procédé                                      | Age Cure                  | $\rho_{app}$<br>(kg.m <sup>-3</sup> ) | $R_c$ (MPa) <sup>d</sup> |           |
|---|------------------|--|--|---------------------------|---------------------------------------|--------------------------|-----------|
| Nguyen [27]<br>LIMATB Lorient<br>Université de<br>Bretagne-Sud  | CH <sup>a</sup>  | NHL<br>PF70<br>Ciment                              | Compactage                                   | 28 jours<br>20°C<br>75%HR | 500–800                               | R                        | <0,5      |
|   |                  |  |  |                           |                                       | P                        | 0,5 – 4   |
| Nozahic [10]<br>Institut Pascal<br>Clermont-Fd<br>Université<br>Blaise Pascal                             | CH               | CL90–S<br>+ponce                                   | Ca(OH) <sub>2</sub><br>Huile de lin          | 60 jours<br>20°C<br>35%HR | 450–500                               | R                        | 0,28      |
|   |                  |  | Réteneur d’eau                               |                           |                                       | P                        | 0,19      |
|   |                  |  |  |                           |                                       | P                        | 0,6 – 1,8 |
| Khazma<br>[39], [40],<br>[125], [126]<br>LTI/EPROAD<br>Amiens<br>Université de<br>Picardie Jules<br>Verne | ADL <sup>b</sup> | Ciment<br>CEM I                                    | Huile de lin                                 | 28 jours<br>20°C<br>95%HR | 580–830                               | R                        | 0,3 – 0,5 |
|   |                  |  | Pectine/PEI                                  |                           |                                       | P                        | 0,6 – 4   |
|   |                  |  | Élastomère                                   |                           |                                       |                          |           |
|   |                  |  | CEM/Saccharose                               |                           |                                       |                          |           |
|   |                  |  | Ajout saccharose                             |                           |                                       |                          |           |
| Manh [104]<br>LMDC<br>Toulouse III<br>(UPS)   | CH               | NHL3.5<br>CL90-S<br>+MK/CG<br>/SP/Sup <sup>e</sup> | Prétraitement du<br>granulat par le<br>liant | 28 jours<br>20°C<br>65%HR | 450–650                               | R                        | 0,65      |
|   |                  |  |  |                           |                                       | P                        | 0,8 – 1,1 |
| Številová et<br>al. [123]<br>Faculty of Civil<br>Engineering<br>Slovakia                                  | CH               | Ciment<br>MgO                                      | Ca(OH) <sub>2</sub><br>Na(OH)<br>EDTA        | 7 jours                   | 1200–1400                             | R                        | 1,7       |
|   |                  |  |  |                           |                                       | P                        | 1 – 1,2   |
| Aigbomian &<br>Fan [30], [31]<br>Brunel<br>University<br>UK   | SDB <sup>c</sup> | PF70   | Eau bouillante +<br>Na(OH) 4%                | 32 jours<br>20°C<br>65%HR | 600–640                               | R                        | 0,33      |
|   |                  |  |  |                           |                                       | P                        | 0,87      |

<sup>a</sup>CH : Chênevotte

<sup>b</sup>ADL : Anas de lin

<sup>c</sup>SDB : Sciures de bois

<sup>d</sup> $R_c$  donnée par Nguyen à 7,5% de déformation

<sup>e</sup>MK : Métakaolin/CG : Carbonate de glycérol/SP : Sulphate de potassium

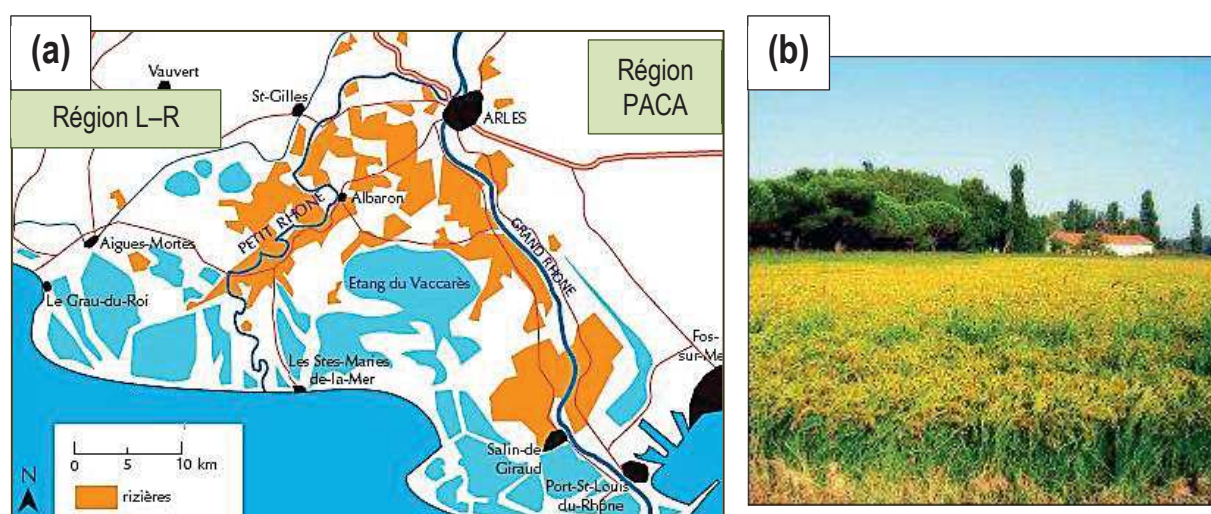
Sup : Superplastifiant

## V. Une ressource innovante : la balle de riz

### V. 1. La balle de riz

#### V. 1. 1. Gisement et applications

Les granulats végétaux valorisés pour la fabrication d'agrobétons isolants proviennent en très grande majorité de tiges végétales (chènevotte, broyats de la tige de tournesol, anas de lin, paillette de miscanthus, etc.). Il est d'usage de privilégier l'utilisation de matières premières locales pour favoriser le développement d'écomatériaux en minimisant l'impact du transport des ressources végétales. Les rizières de Camargue se situent au confluent des régions Languedoc-Roussillon (L-R) et PACA (Figure 1-42) et représentent une production d'environ 80 000 Tonnes de riz paddy par an en 2013 [127]. L'incorporation de la paille de riz comme renfort dans une matrice cimentaire a fait l'objet de quelques travaux, notamment ceux de Morsi [11].



**Figure 1-42.** (a) Bassins rizicoles de Camargue (b) Gerbes de riz

La récolte des grains de riz consiste tout d'abord à séparer les graines de la paille sur les gerbes de riz puis à éliminer les impuretés (insectes, minéraux, débris végétaux). Les grains subissent ensuite une opération de séchage avant d'être décortiqués. Le décortiquage permet finalement de séparer le grain paddy de ses glumelles. Ces dernières se présentent sous la forme de demi-coques et correspondent aux balles de riz (Figure 1-43a)[128]. On parle de balles de riz naturelles lorsque le procédé s'effectue sans transformation et de balles étuvées lorsque les grains sont trempés puis exposés à la vapeur d'eau avant le décortiquage. La balle de riz peut donc finalement être définie comme un sous-produit de la riziculture. Elle est

issue d'un processus agro-industriel mis en œuvre sur les gerbes de plants de riz (« *Oryza Sativa* »). Elle représente environ 20% en masse du grain entier non décortiqué [129] ce qui donne une production annuelle de l'ordre de 15 000 tonnes de balles de riz en Camargue (c'est-à-dire en France). Les balles de riz posent notamment des problèmes de stockage dans les bassins rizicoles dans la mesure où elles représentent de grands volumes. Les valorisations actuelles dont elles font l'objet sont très fortement limitées. Ces sous-produits sont souvent assimilés à des pertes. Les applications principales concernent l'enfouissement dans le sol pour l'apport de matière humique ou la calcination. Les balles de riz peuvent effectivement être utilisées comme combustibles dans la production d'énergie électrique ou de chaleur en raison de leur pouvoir calorifique élevé [130]. Dans le secteur du bâtiment, la cendre issue de la calcination de la balle de riz a fait l'objet de très nombreux travaux de recherche [129], [131]–[135]. La balle de riz est caractérisée par une teneur en matière organique plus faible que la majorité des autres ressources lignocellulosiques puisqu'elle contient environ 20% de silice amorphe concentrée principalement sur sa surface externe (convexe) [131], [136]. Par conséquent, lorsque la balle de riz est calcinée au-delà de 500°C, la matière organique disparaît et laisse place à une cendre nanométrique très riche en silice ( $\text{SiO}_2$ ). Les cendres contiennent en effet 95% de silice et développent une très haute réactivité pouzzolanique [131], [135]. Elles peuvent donc être utilisées comme filler pouzzolanique dans les ciments Portland pour améliorer les performances mécaniques des bétons ordinaires au même titre que les cendres volantes ou les fumées de silice. Il est bien évident que ce type de valorisation n'est absolument pas bénéfique d'un point de vue environnemental en raison du processus d'incinération (fumées polluantes, particules en suspension).

A l'issue du processus de décorticage, indispensable pour récupérer le grain de riz paddy, les balles de riz se présentent sous la forme d'un granulat végétal en vrac comme exposé en Figure 1-43b.



**Figure 1-43.** (a) Glumelles autour du grain de riz (b) Balles de riz en vrac [128]

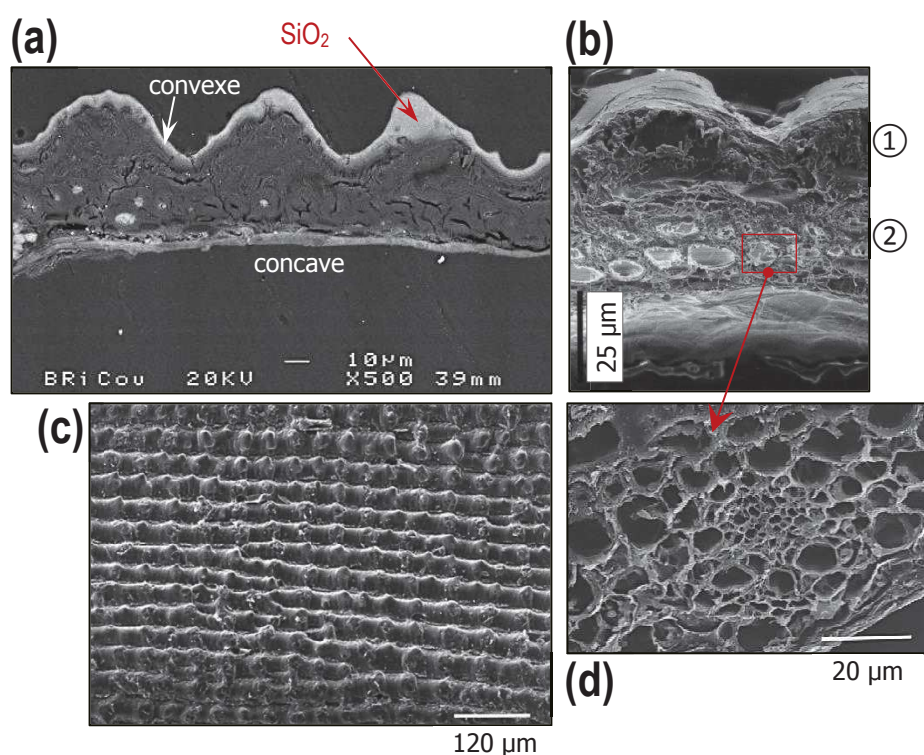


L'utilisation de balles céréalières issues de graminées pour confectionner des agrobétons légers isolants constitue une démarche tout à fait originale. Malgré une géométrie et une forme différentes de celles de granulats issus des tiges (comme la chènevotte), ces sous-produits lignocellulosiques présentent l'avantage de ne pas nécessiter de processus de broyage avant une incorporation dans la matrice minérale.

## V. 1. 2. Caractéristiques

### V. 1. 2. 1 Microstructure

La microstructure et la répartition de la silice amorphe dans la balle de riz ont été décrites par Jauberthie et al. [131] ainsi que Park et al. [137] (Figure 1-44).



**Figure 1-44.** (a) Répartition de la silice amorphe sur une coupe transversale de balle de riz [131] (b) Coupe transversale de la balle de l'épiderme externe à l'épiderme interne [137] (c) Morphologie de l'épiderme externe de la balle de riz [137] (d) coupe transversale de la zone vascularisée [137]

La surface externe de la balle (face convexe) est caractérisée par une morphologie bien particulière sous forme de rangées de protrusions coniques séparées par des sillons linéaires (Figure 1-44c). Cet épiderme externe est très riche en silice amorphe comme le montre la coupe effectuée par Jauberthie et al. en contraste de phase (Figure 1-44a). Les couches sous-jacentes à l'épiderme correspondent à des couches de fibres à paroi cellulaire très



épaisse [137]. Cette zone est fortement lignifiée et ne laisse entrevoir que très peu de porosité (Figure 1-44b①). La partie plus inférieure des tissus internes de la balle de riz fait apparaître une région de faisceaux vasculaires (Figure 1-44b②). Il s'agit des capillaires longitudinaux du phloème et du xylème comme on peut les observer également à l'intérieur d'une particule de chènevotte. Ils donnent lieu à une région dont la porosité est nettement plus marquée comme l'atteste la coupe transversale en Figure 1-44d. Selon Park et al. [137], l'intérieur de la balle de riz (entre l'épiderme de la face convexe et celui de la face concave) est constitué de couches de fibres, de vaisseaux capillaires et de cellules parenchymateuses. L'épiderme de la face concave est beaucoup plus lisse que l'épiderme externe et il contient également moins de silice. Cette dernière est en proportion négligeable dans les tissus internes (Figure 1-44a) [131].

#### V. 1. 2. 2 Masses volumiques et porosités

La masse volumique en vrac des balles de riz non tassées est de l'ordre de  $100 \text{ kg.m}^{-3}$  selon Jha et Singh [138], soit une valeur identique à celle du granulat de chènevotte. La masse volumique apparente d'une balle de riz est toutefois bien plus élevée que celle de la chènevotte et s'élèverait à environ  $450 \text{ kg.m}^{-3}$  selon Salas Serrano et Veras Castro [1]. La masse volumique absolue est en revanche plus faible que celle de la chènevotte [130], [139] ce qui traduit une porosité plus faible (Tableau 1-12). Cette porosité intra-particule serait de l'ordre de 40 à 50% selon le calcul effectué dans le Tableau 1-12 et la littérature [140] et serait constituée d'une certaine quantité de pores fermés [141]. Le calcul de la porosité inter-granulaire du mélange en vrac montre que cette dernière est très importante et ce en raison de la masse volumique apparente d'une particule élevée (Tableau 1-12). Ce résultat concorde bien avec celui de Kaupp et Goss [141] estimant que le volume d'air des interstices entre les balles représente environ 85% du volume total apparent. La porosité totale du mélange granulaire s'élève donc à un niveau proche de celui de la chènevotte ( $\approx 90\%$ ). Le granulat de balles de riz pourrait donc présenter une bonne capacité d'isolation thermique.

**Tableau 1-12.** Masses volumiques et porosités des balles de riz

|   |          |
|---|----------|
| $\rho_B$ : Masse volumique apparente en vrac à l'état sec ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) [138], [139]                                 | 98–108   |
| $\rho_T$ : Masse volumique apparente (vraie) des particules sèches ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) [1]                                 | 453      |
| $\rho_S$ : Masse volumique absolue ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) [130], [139]  | 780      |
| Porosité totale : $\eta_{\text{Tot-Gr}} = 1 - \rho_B/\rho_S$  | 87%      |
| Porosité inter-granulaire : $\eta_{\text{Inter}} = 1 - \rho_B/\rho_T$   | 78%      |
| Porosité intra-granulaire des particules isolées : $\eta_{\text{Intra-P}} = 1 - \rho_T/\rho_S$ [140]                          | 40 – 50% |
| Porosité intra-granulaire par rapport au mélange : $\eta_{\text{Intra/Tot}} = \eta_{\text{intra-P}}(1 - \eta_{\text{inter}})$ | 9 – 11%  |

### V. 1. 2. 3 Conductivité thermique

Yarbrough et al. [142] reportent la conductivité thermique d'un mélange de balles de riz en vrac mesurée à 24°C. Elle varie de 0,046 à 0,057 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> pour une masse volumique apparente du mélange variant de 139 à 168 kg.m<sup>-3</sup>.

### V. 1. 2. 4 Capacité d'absorption d'eau

Selon une étude effectuée par Tamba et al. [143], la balle de riz absorberait environ 80% de sa masse en eau avant d'arriver à saturation après 20 heures d'immersion. L'étude de González De La Cotera [139] annonce un pourcentage d'absorption d'eau des balles de riz saturées superficiellement sèches d'environ 122% sans donner davantage de détails.

### V. 1. 2. 5 Composition chimique

La composition organique de la balle de riz est assez similaire à celle de la majorité des sous-produits lignocellulosiques. La particularité concerne la présence de cendres (15 à 25%) qui contiennent une quantité élevée de silice (Tableau 1-13).

**Tableau 1-13.** Composition chimique de la balle de riz [48], [144]

| Cellulose (%) | Hémicelluloses (%) | Lignine (%) | Silice (%) | Extractibles (%) |
|---------------|--------------------|-------------|------------|------------------|
| 25–35         | 18–21              | 26–31       | 15–25      | 2–5              |

Par ailleurs, on note que le décortiquage des grains de riz n'est pas un processus parfait et la présence de grains non décortiqués dans la balle de riz en vrac est assez récurrente. Selon Delot (Association Le Village – Cavaillon) [145], la balle de riz n'est pas comestible pour les rongeurs. Ce n'est en revanche pas du tout le cas des grains paddy. Le degré d'appétence de la balle de riz va donc dépendre de la quantité résiduelle de grains. Delot [145] a estimé la présence de grains à hauteur de 0,06 à 0,8% en masse du granulat de balles de riz selon la variété et l'efficacité du décortiquage. L'attaque par les rongeurs est donc un facteur à ne pas négliger lorsqu'il s'agit d'utiliser la balle de riz pour la confection d'écomatériaux.

## V. 2. Valorisation sans calcination dans des matrices cimentaires

L'utilisation des balles de riz sans calcination en association avec un liant minéral a été très peu étudiée. Seuls quelques rares travaux ouvrent des perspectives de valorisation de ce sous-produit dans la fabrication de mortiers allégés à base de ciment Portland [1], [2], [130], [139], [143], [146]–[148]. Cependant, la plupart de ces travaux font intervenir une

faible fraction volumique de balles de riz dans la matrice et les granulats minéraux sont parfois conservés. De plus, certains auteurs s'intéressent directement aux performances mécaniques de leurs matériaux en utilisant des balles de riz ayant subi des traitements chimiques sans même effectuer de comparaison avec un témoin formulé à base de balles de riz brutes. Les formulations étudiées entrent rarement dans la catégorie des bétons isolants compte tenu de leur densité finale supérieure à  $800\text{--}1000\text{ kg.m}^{-3}$  dans de très nombreux cas. Il s'agit plutôt de bétons légers porteurs.

Les études de Sisman et al. [147] et Salas Serrano et al. [1], [2] s'intéressent aux performances mécaniques de bétons allégés dont les granulats minéraux sont substitués par une fraction croissante de balles de riz entières. Seules quelques formulations incorporent des balles de riz traitées dans une solution de chaux à 5% [1], [2]. L'étude de Salas Serrano et al. (1985) [1] est assez intéressante car le béton ne contient pas de granulats minéraux et les densités et ratios C/BR<sup>a</sup> sont similaires à ceux des bétons de chanvre. Les travaux de Tamba [146] présentent l'inconvénient de présenter seulement les résultats obtenus sur des bétons à base de balles de riz traitées au peroxyde d'hydrogène (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). Jauberthie et al. [148] mettent en évidence des résistances en compression étonnamment élevées malgré le degré de maturité plus avancé de leurs bétons (1 an) (Figure 1-45a).

Les formulations des auteurs précédemment cités sont détaillées dans le Tableau 1-14 ci-dessous :

**Tableau 1-14.** Descriptif des formulations

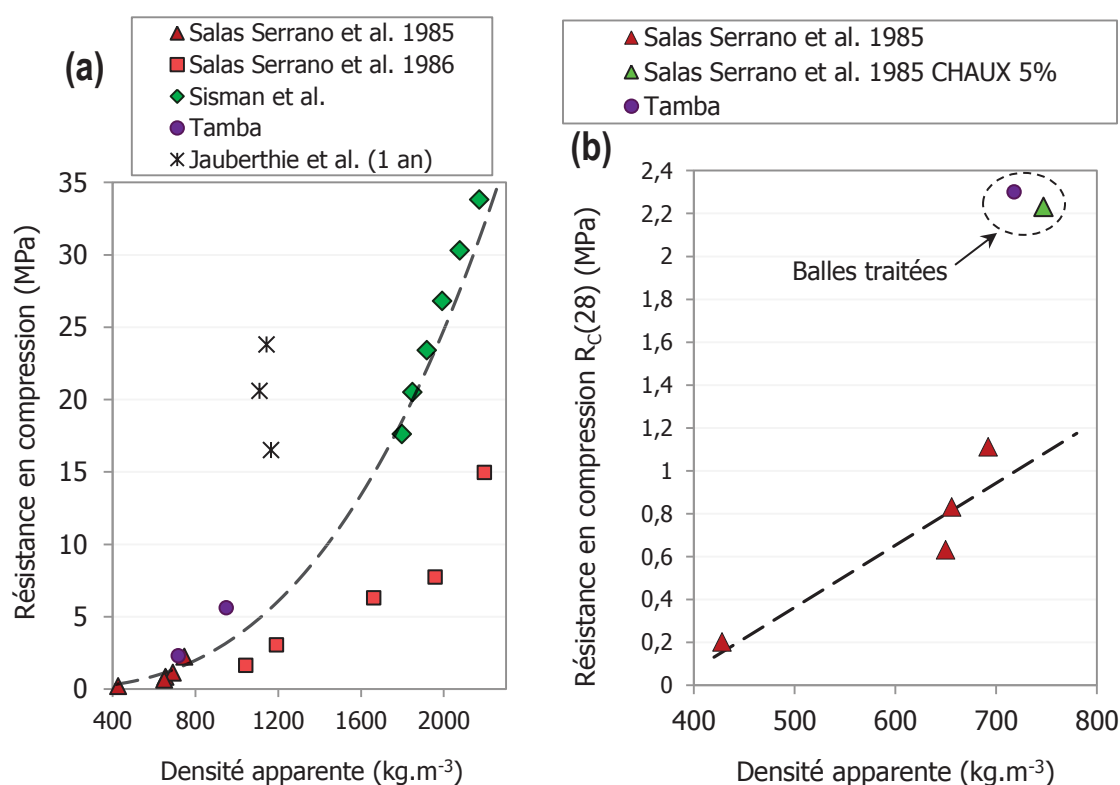
| Etude                           | Liant  | Cure                         | E/C  | C/BR <sup>a</sup> | C/GM <sup>b</sup> | Densité (kg.m <sup>-3</sup> ) |
|---------------------------------|--|------------------------------|------|-------------------|-------------------|-------------------------------|
| Sisman et al. [147]             | Ciment Portland (ASTM type 1-42,5)               | Conservation sous eau (20°C) | 0,60 | 84 à 14           | 0,15 à 0,22       | 2270 à 1800                   |
| Salas Serrano et al. (1986) [2] | Ciment Portland (P-ARI-450)                      | 20°C – 95%HR                 | 0,71 | 16 à 3            | 0,15 à 1,5        | 2360 à 1040                   |
| Salas Serrano et al. (1985) [1] | Ciment Portland avec 18% d'ajouts pouzzolaniques | 24°C – 95%HR                 | 0,75 | 1,42 à 2,6        | —                 | 428 à 747                     |
| Tamba [146]                     | Portland CPA CEM 1 52.5                          | 7 j. 100%HR<br>20°C – 50%HR  | 0,62 | 2 à 3             | —                 | 718 à 950                     |
| Jauberthie et al. [148]         | CPA CEM 1 52.5                                   | 20°C – 50%HR<br>20°C – 95%HR | 0,56 | 3                 | —                 | 1145 à 1166                   |

<sup>a</sup>Ratio massique Ciment/Balles de riz

<sup>b</sup>Ratio massique Ciment/Granulats minéraux

Les auteurs utilisent un mode de conservation prenant en compte l'utilisation d'un liant exclusivement hydraulique soit généralement 20°C – 95%HR. Sisman et al. [147] conservent même leurs éprouvettes sous eau. Il est bien évident que ce type de conservation a pu être réalisé compte tenu du dosage en balles de riz extrêmement faible (inférieur à 20 kg.m<sup>-3</sup>).

Les résistances en compression à 28 jours des formulations détaillées dans le Tableau 1-14 sont reportées en Figure 1-45. Pour des bétons dont la densité varie de 428 kg.m<sup>-3</sup> à la densité du béton ordinaire, les résistances en compression semblent suivre une tendance de type loi puissance (Figure 1-45a). La Figure 1-45b reporte la résistance en compression à 28 jours de bétons sans granulats minéraux dont la densité est inférieure à 800 kg.m<sup>-3</sup> et le ratio L/G (i.e. C/BR) compris entre 1,4 et 3,6. La tendance obtenue est assez proche de celle des bétons de chanvre. On distingue la formulation de Salas Serrano et al. [1] à base de balles de riz traitées dans une solution de chaux à 5% dont la résistance mécanique a été fortement améliorée ainsi que la formulation de Tamba [146] incorporant des balles de riz ayant subi un traitement H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. On peut également citer une étude plus récente reportant l'efficacité relative du CaCl<sub>2</sub> comme accélérateur de prise sur des mortiers à base de ciment et de balles de riz broyées et traités à la soude [130].



**Figure 1-45.** Résistances en compression à 28 jours de mortiers ou bétons à base de ciment et de balles de riz issues de la littérature en fonction de la densité apparente (a) Sur une large gamme de densités (b) Pour les études traitant de bétons dont la densité est inférieure à 800 kg.m<sup>-3</sup> [1], [2], [146]–[148]

On note aussi qu'il n'existe aucune donnée dans la littérature à propos de l'association de balles de riz avec des liants alternatifs au ciment Portland (chaux, pouzzolanes, etc.)

Seule l'étude de Salas Serrano et al. (1985) [1] s'intéresse à la mesure de conductivité thermique de bétons ciment/balles de riz par la méthode fluxmétrique. Les auteurs reportent une conductivité thermique de  $0,106 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour une densité apparente de  $653 \text{ kg.m}^{-3}$ .

## **VI. Conclusion et démarche du travail de thèse**

Ce chapitre d'analyse bibliographique a permis de faire un état de l'art sur la valorisation des ressources lignocellulosiques dans des matrices minérales. Il s'est principalement focalisé sur l'étude d'agrobétons légers isolants contenant une forte fraction volumique de granulats végétaux. Dans ce domaine, les bétons de chanvre font figure d'exemple à suivre. Formulés à base de chènevotte et d'un liant souvent à base de chaux, les bétons de chanvre sont de bons candidats pour optimiser l'enveloppe du bâtiment en raison de leur très bonne capacité de régulation hygrothermique. Ils doivent néanmoins être associés à une structure porteuse pour constituer une enveloppe à isolation répartie et concurrencer les blocs de terre cuite et de bétons cellulaire jouant souvent un rôle porteur et isolant. Nous avons vu que la grande variabilité des propriétés mécaniques est liée à de nombreux facteurs comme le liant utilisé et son dosage, le mode de mise en œuvre, l'âge du béton, les conditions de cure ou encore les caractéristiques intrinsèques au granulat de chènevotte utilisé. L'association de particules lignocellulosiques à forte teneur en matière organique et à porosité élevée avec un liant minéral n'est pas sans poser problèmes. Nous avons reporté les principaux travaux ayant permis d'améliorer sensiblement les performances mécaniques des bétons de chanvre par différents procédés (traitements chimiques de surface, enrobage hydrophobe, pré-traitement par le liant, adjuvants rétenteurs d'eau, additions pouzzolaniques, compactage élevé). Il s'agit de s'orienter vers la confection de blocs à résistance mécanique améliorée. La faible résistance mécanique du béton de chanvre ainsi que le manque de recul sur sa durabilité peuvent effectivement freiner son utilisation par les professionnels du bâtiment.

Le travail de thèse se propose de valoriser la balle de riz comme granulat léger pour confectionner des agrobétons dont l'application est identique à celle des bétons de chanvre. Nous avons vu que ce sous-produit de la riziculture est souvent calciné et que les tentatives de fabrication de bétons légers à base de balles de riz entières sont très rares. Dans notre cas, les balles de riz seront utilisées sans broyage ni calcination en provenance directe d'un bassin rizicole local (Arles). Une attention particulière a été portée sur les liants minéraux et en particulier les liants à base de chaux dans ce chapitre bibliographique. Le liant utilisé dans notre étude sera un mélange de chaux aérienne CL90-S et de chaux hydraulique NHL3.5 de façon à élaborer un écomatériau à faible impact environnemental et prenant en compte les

problèmes de compatibilité liant/végétal exposés dans la littérature. Toutes les investigations menées seront basées sur une étude comparative du béton innovant à base de balles de riz avec le béton de chanvre considéré ici comme le matériau de référence. Les résultats des travaux de recherche exposés dans ce document se déclinent en 3 parties :

(1) La caractérisation des particules végétales préalablement à leur association avec le liant, la formulation des agrobétons avec une densité apparente inférieure à  $800 \text{ kg.m}^{-3}$  à l'état sec et l'étude de la conductivité thermique et des caractéristiques mécaniques en compression des agrobétons à court terme (1 et 2 mois).

(2) Le suivi des performances mécaniques en compression des bétons et du durcissement du liant à base de chaux jusqu'à 10 mois de conservation à  $20^{\circ}\text{C}$  – 50%HR ou à l'extérieur et l'effet d'une cure des bétons en carbonatation accélérée (bétons exposés à une atmosphère riche en  $\text{CO}_2$ ). Ce type de cure n'a fait l'objet d'aucune étude approfondie auparavant.

(3.a) L'influence de l'humidité relative et de la température durant le premier mois de cure sur les performances mécaniques des mortiers à base de chaux et des agrobétons. Il s'agit de mieux comprendre quel est l'effet d'une cure humide et d'une élévation de température sur le durcissement du liant et sur l'interface liant/granulat dans les agrobétons étudiés.

(3.b) L'effet d'un prétraitement des particules végétales à l'eau de chaux sur les propriétés mécaniques des agrobétons après 28 jours.

# Chapitre 2

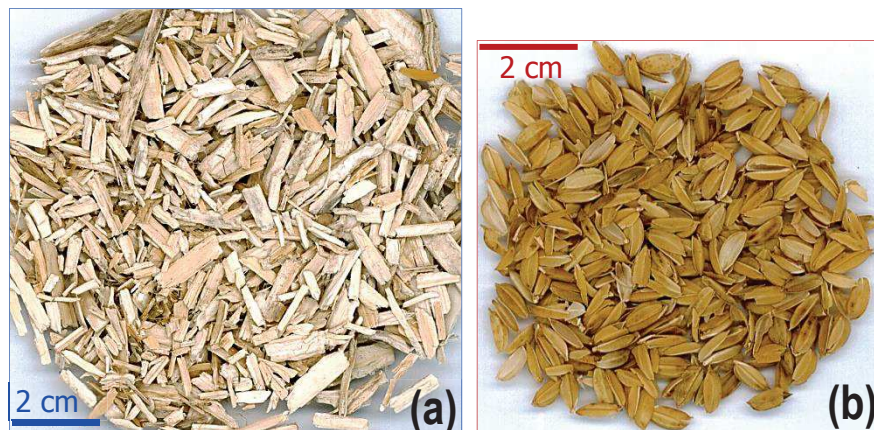
## Matériaux et méthodes

### I. Matériaux

#### I. 1. Granulats végétaux

Deux types de sous-produits végétaux sont utilisés dans ce travail :

- Un granulats de chènevotte provenant de la société FRD (Troyes) et conforme au label granulats chanvre associé aux règles professionnelles de la Construction en Chanvre (Figure 2-1a) [103].
- Des balles de riz naturelles provenant de la société Biosud (Arles) comme ressource locale (Figure 2-1b).



**Figure 2-1.** Granulats végétaux (a) Chènevotte commerciale (b) Balles de riz naturelles



## I. 2. Liant à base de chaux

Les particules végétales sont associées à un liant à base de deux chaux commerciales différentes :

- Une chaux hydraulique NHL3.5 (Lafarge)
- Une chaux aérienne CL90-S (Saint-Astier)

Le liant utilisé pour la confection des agrobétons correspond à un mélange à 50% en masse de NHL3.5 et de CL90-S (noté NHL3.5/CL90-S en Table 2-1).

La masse volumique en vrac ( $MV_v$ ) et la composition chimique des chaux provenant de la littérature sont reportées en Table 2-1. La composition minéralogique obtenue par analyse thermogravimétrique (ATG) sur les poudres anhydres (Figure 2-2) et à partir des données du fournisseur est également détaillée en Table 2-1.

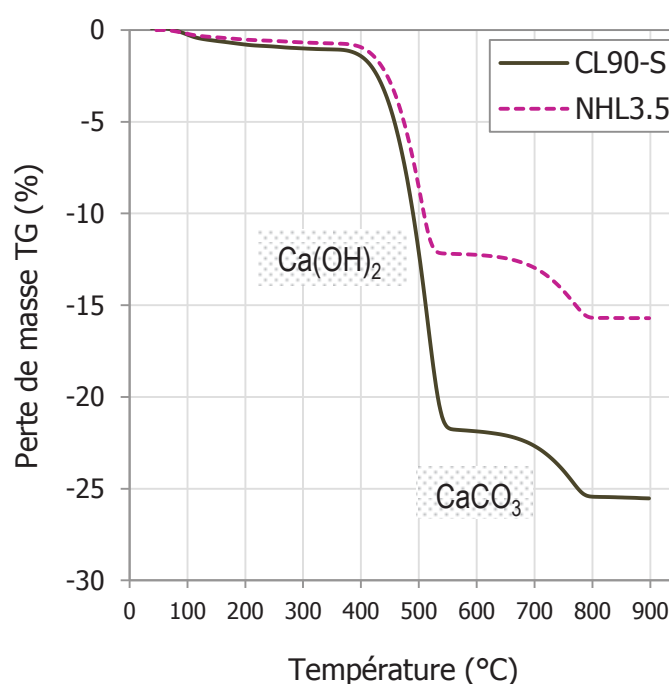
**Table 2-1.** Caractéristiques physico-chimiques des chaux utilisées

| Chaux              | $MV_v$<br>( $\text{kg.m}^{-3}$ ) | Chimie (%) <sup>a</sup> |                  | Minéralogie (%)       |                    |                     |
|--------------------|----------------------------------|-------------------------|------------------|-----------------------|--------------------|---------------------|
|                    |                                  | CaO                     | SiO <sub>2</sub> | Ca(OH) <sub>2</sub> * | C <sub>2</sub> S** | CaCO <sub>3</sub> * |
| NHL3.5 [94], [149] | ~850                             | 60-70                   | 6-10             | 45                    | ~30                | 8-10                |
| CL90-S [104]       | ~450                             | >70                     | –                | 85                    | –                  | 8-10                |
| NHL3.5/CL90-S      |                                  |                         |                  | 65                    | ~15                | 8-10                |

\*Analyse thermogravimétrique (ATG) sous air à  $10^\circ\text{C.min}^{-1}$  sur le liant stocké dans un sac étanche

\*\*Données du fournisseur

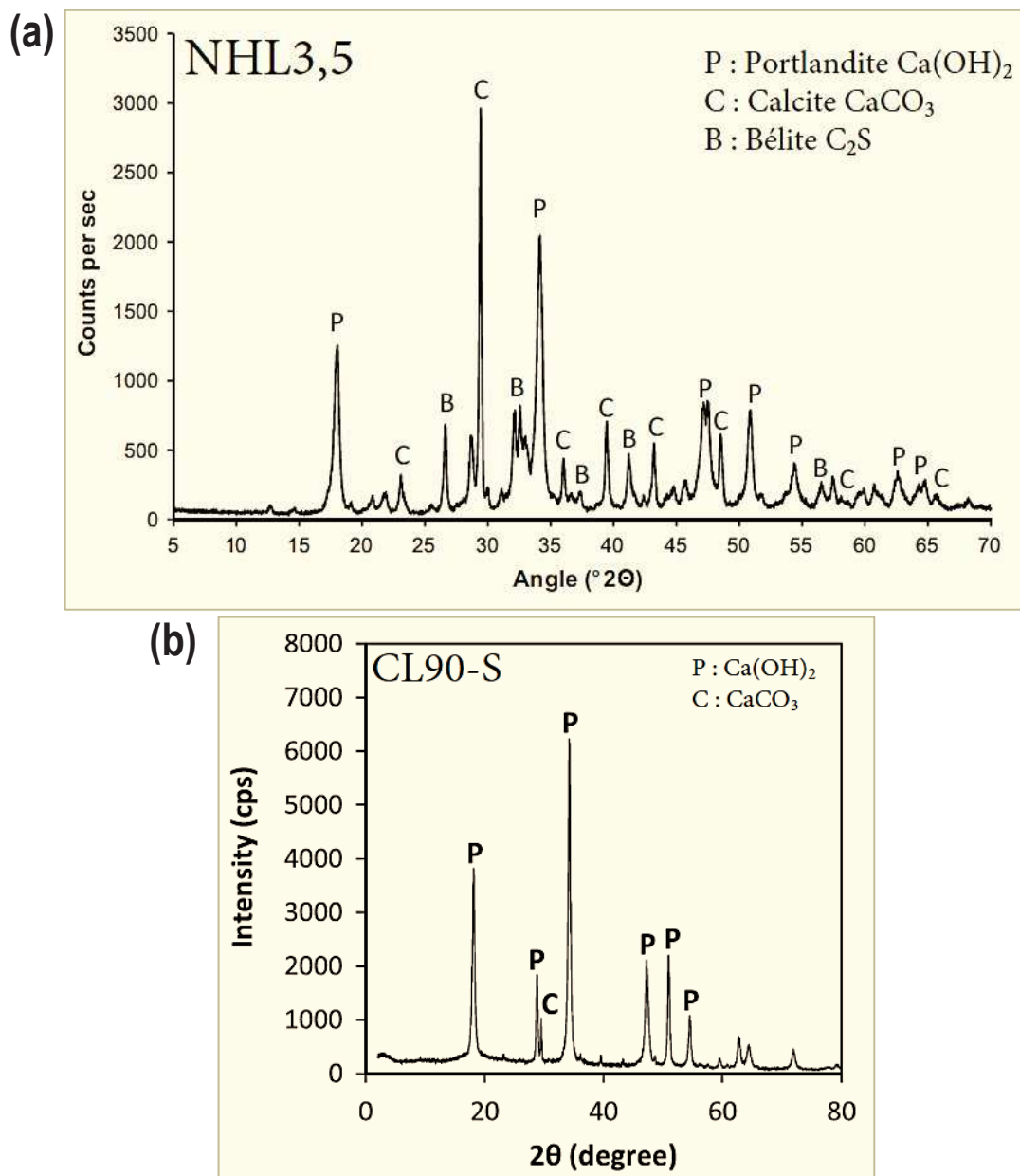
<sup>a</sup> Perte au feu : NHL3.5 ~ 15% – CL90-S ~ 25% [104]



**Figure 2-2.** Courbes ATG des chaux commerciales

L'analyse thermique des chaux (Figure 2-2) montre la déshydroxylation de  $\text{Ca(OH)}_2$  entre 400°C et 550°C et la décarbonatation de  $\text{CaCO}_3$  entre 650°C et 850°C. Les deux chaux contiennent une quantité de calcite équivalente. La teneur en  $\text{Ca(OH)}_2$  de la chaux aérienne est en revanche bien plus élevée.

Les spectres DRX (Diffraction des rayons X) de la chaux hydraulique NHL3.5 et de la chaux aérienne CL90-S (Figure 2-3a&b) montrent les phases minéralogiques de ces liants. La présence de silicates de calcium ( $\text{C}_2\text{S}$ ) est notamment mise en évidence dans la chaux hydraulique (Figure 2-3a).



**Figure 2-3.** Spectres DRX des chaux commerciales (a) NHL3.5 (b) CL90-S [102], [150]

## II. Formulation et mise en œuvre

### II. 1. Agrobétons

#### II. 1. 1. Dosages

Le dosage en granulats végétaux est tel que le ratio massique Liant/Granulat (noté L/G) est égal à 2. Il correspond à la formulation « MUR » exposée dans le chapitre précédent. Ce ratio sera notamment appliqué pour l'ensemble du travail de thèse à l'exception de l'étude de la conductivité thermique figurant dans l'article A (Chap. 3) où le ratio massique L/G varie de 1,5 à 2,5. En ce qui concerne les dosages en eau, le rapport massique Eau/Liant (noté E/L) est calculé en additionnant l'eau de gâchage à l'eau de prémouillage des granulats. En raison de l'absorption en eau consécutive des particules végétales, on procède en effet à un prémouillage initial avant d'incorporer le liant. Cette quantité d'eau pourra être déterminée suite aux résultats du test d'absorption (Chap. 3, III.2.1). La quantité d'eau de gâchage  $E_G$  est telle que le ratio massique  $E_G/L = 0,5$  [10].

#### II. 1. 2. Mise en œuvre

Les particules végétales sont dans un premier temps introduites dans un malaxeur de contenance 40 Litres. L'eau de prémouillage est ajoutée et le malaxeur est activé durant 5 minutes avant d'incorporer les chaux. Un premier malaxage « à sec » a lieu durant 2 minutes afin de faciliter l'enrobage des particules par le liant puis l'eau de gâchage est ajoutée. Le dernier cycle de malaxage dure 5 minutes.

La mise en œuvre du mélange final dans des moules cylindriques  $\Phi 11 \times 22 \text{ cm}^3$  est détaillée dans l'article A (Chap. 3, II.2.2) au même titre que les dosages des différents constituants en  $\text{kg.m}^{-3}$  à l'état frais (Chap. 3, III.2.1).

### II. 2. Mortiers de chaux

Des mortiers de chaux normalisés (NF EN 459-1 [67]) sont fabriqués à base de chaux hydraulique NHL3.5, de chaux aérienne CL90-S ainsi que du mélange NHL3.5/CL90-S. Ils permettront d'étudier l'effet des conditions de cure sur le durcissement du liant.

La détermination de la quantité d'eau nécessaire pour obtenir une consistance adéquate s'effectue à l'aide d'une table à choc manuelle (table d'écoulement). Le mode de fabrication

des mortiers et les dosages en chaux, en sable normal et en eau de gâchage sont détaillés dans l'article C (Chap. 5, II.2.1). Les éprouvettes sont de dimensions  $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$ .

### **III. Conditions de cure**

Quelles que soient les conditions de cure adoptées, les éprouvettes sont démoulées 24 heures après leur fabrication. Durant cette période, le mélange est donc confiné dans le moule en humidité saturée.

Les essais de caractérisation et les tests de résistance en compression sur les agrobétons ou les mortiers à base de chaux sont menés suite à une conservation des échantillons dans des conditions de température ( $T^\circ\text{C}$ ) et d'humidité relative (%HR) différentes (température ambiante ou  $50^\circ\text{C}$  et 50%HR ou 95%HR). L'effet d'une cure en carbonatation accélérée est également étudié sur les agrobétons.

#### **III. 1. Conservation naturelle**

La mesure de la conductivité thermique et l'évaluation des propriétés mécaniques en compression des agrobétons en conditions dites standards concernent l'article A (Chap. 3). Les éprouvettes sont alors conservées jusqu'à 60 jours dans une pièce contrôlée à  $20^\circ\text{C}$  et 50%HR (Figure 2-4a). La conservation en conditions standards est prolongée jusqu'à 10 mois et comparée à une conservation des agrobétons à l'extérieur sous abris (Figure 2-4b) dans l'objectif de suivre l'évolution des propriétés mécaniques et du durcissement avec l'âge des bétons. Cet aspect concerne principalement l'article B (Chap. 4). On note que pour la conservation extérieure, les éprouvettes sont stockées au Centre des Matériaux des Mines d'Alès (C2MA). Un système d'acquisition de la température et de l'humidité relative (Almemo 2890-9, Ahlborn) permet d'enregistrer leur évolution au cours des 10 mois (Novembre 2013 à Septembre 2014). Les profils de température et d'humidité sur la totalité de la période sont présentés dans l'article B (Chap.4, II.2.2).

#### **III. 2. Carbonatation accélérée**

La conservation des éprouvettes dans une enceinte à taux de  $\text{CO}_2$  élevé (carbonatation accélérée) est étudiée dans l'article B (Chap. 4). Les éprouvettes sont dans un premier temps conservées dans la pièce contrôlée à  $20^\circ\text{C}$  – 50%HR pour permettre une désaturation préalable des pores indispensable avant de démarrer la cure en enceinte de carbonatation accélérée. La durée de cette période est définie suivant la cinétique de séchage des bétons et l'évolution de l'humidité relative à cœur des éprouvettes. Cette dernière est évaluée au

moyen d'un hygromètre placé dans une éprouvette forée à l'état frais. Le choix et la durée du pré-conditionnement (liée au suivi de l'hygrométrie à cœur des bétons) sont clairement décrits dans l'article B (Chap. 4, II.2.3).

Lorsque les conditions sont favorables ( $HR = 60\%$ ), les éprouvettes sont placées dans des dessiccateurs en verre alimentés en  $CO_2$  (Figure 2-4c). La concentration en  $CO_2$  à l'intérieur du dessiccateur suite à la recharge du système est de 50% en volume. Les dessiccateurs ne sont pas alimentés en continu mais par apports à des intervalles de temps donnés. Cette méthode permet notamment d'approximer la consommation du  $CO_2$  par la chaux au cours des recharges. Le détail du système d'alimentation et du calcul de la masse de  $CO_2$  consommée est apporté dans l'article B (Chap. 4, II.2.4).

Une solution saline permet d'assurer la régulation de l'hygrométrie ambiante à 65 %HR. Le système est placé dans la pièce à 20°C (Figure 2-4c).

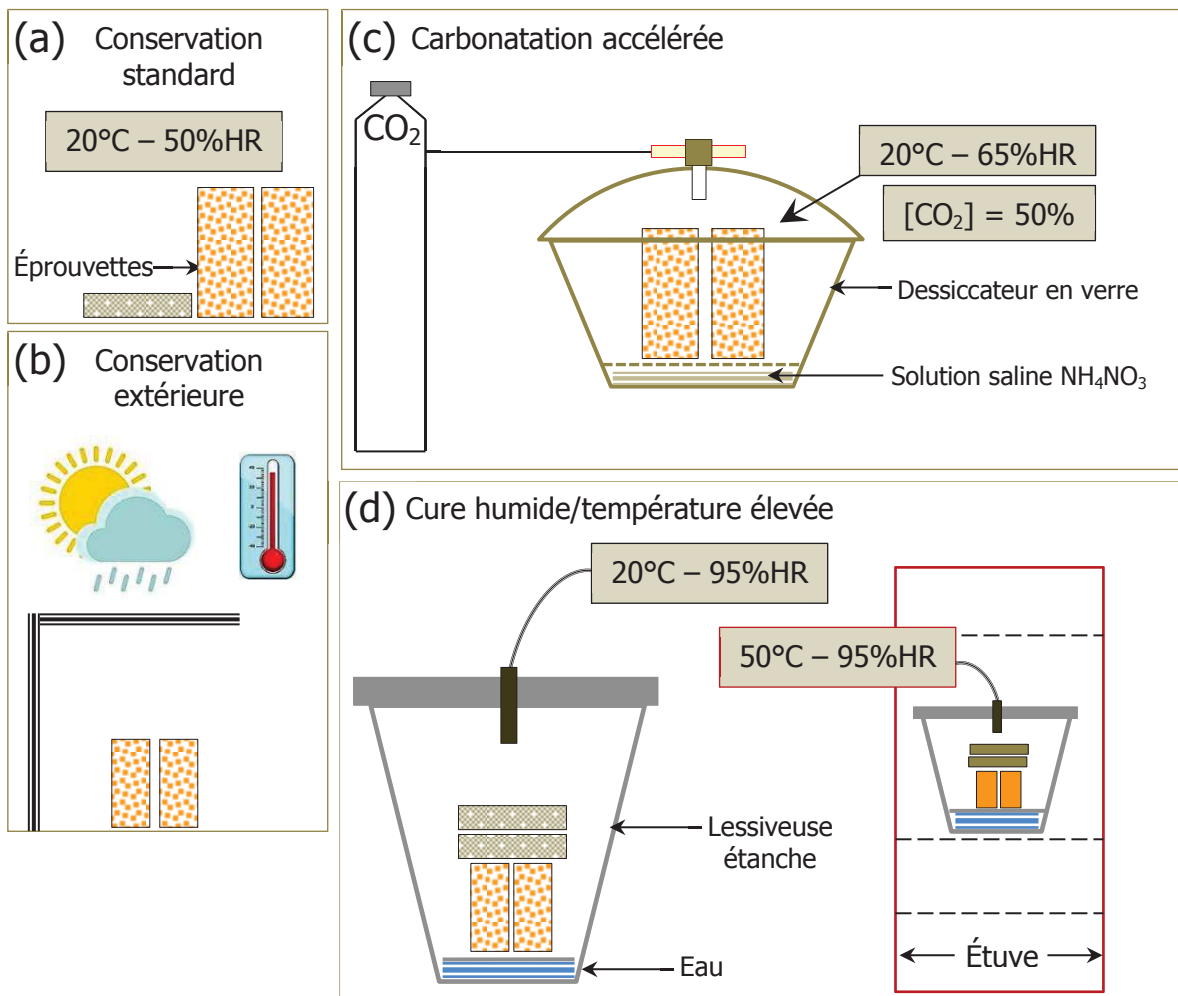
Le temps de séjour des éprouvettes dans les dessiccateurs sera défini en fonction de la consommation en  $CO_2$ .

### III. 3. Cure en humidité saturée et à température élevée

L'effet d'une conservation à forte humidité relative (95%HR) durant 7 ou 21 jours sur les performances mécaniques des mortiers de chaux ou des agrobétons à 28 jours est étudié dans l'article C (Chap. 5). Pour cela, les éprouvettes sont placées immédiatement après leur démoulage (mortiers et bétons) dans des lessiveuses étanchéifiées contenant environ 2 centimètres d'eau chaude en dessous du support métallique des éprouvettes (Figure 2-4d). Les lessiveuses sont ensuite conservées dans la pièce à 20°C et un hygromètre placé à l'intérieur permet de contrôler la saturation pendant la cure ( $HR > 95\%$ ).

L'article C concerne également l'effet d'une température de cure élevée durant les 7 premiers jours. Dans ce cas, les éprouvettes sont conditionnées de la même façon que précédemment mais les lessiveuses sont placées dans une étuve réglée à 50°C. Le maintien des conditions de saturation est également contrôlé au moyen d'un hygromètre. L'équilibre entre la température de 50°C et l'humidité saturée est obtenu au bout de quelques heures.

De façon à effectuer les essais de compression sur des matériaux ayant la même teneur en eau, les mortiers de chaux conservés 21 jours à 95%HR sont ensuite stockés à 20°C – 50%HR jusqu'à 28 jours. Ceci leur permet d'atteindre un équilibre hydrique équivalent à celui des mortiers conservés 28 jours en conditions standards. La cinétique d'évaporation d'eau des agrobétons étant nettement plus longue, ceux-ci sont étuvés à 50°C pour parvenir à atteindre une masse identique à celle obtenue sur les agrobétons après la conservation en conditions standards.



**Figure 2-4.** Modes de conditionnement des éprouvettes après leur fabrication selon la cure  
 (a) Conservation standard à l'intérieur en ambiance contrôlée (20°C – 50%HR)  
 (b) Conservation extérieure sous abris  
 (c) Conservation en enceinte de carbonatation accélérée  
 (d) Cure humide (95%HR) à température ambiante (20°C) et à température élevée (50°C)

## IV. Méthodes de caractérisation

### IV. 1. Particules végétales

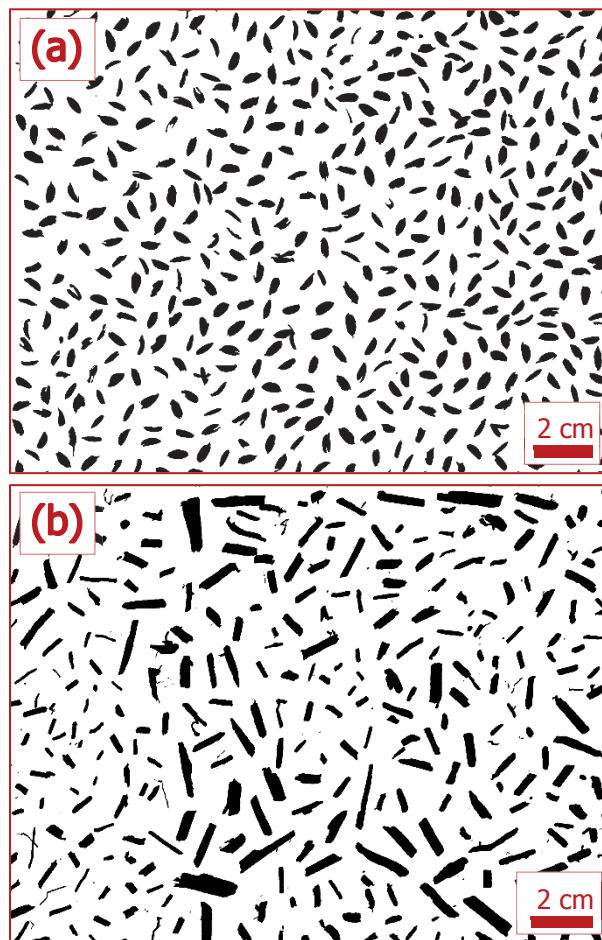
#### IV. 1. 1. Granulométrie par analyse d'image

L'analyse d'image est une méthode tout à fait adaptée pour déterminer la distribution granulométrique de particules végétales qui présentent une forme beaucoup plus élançée que les granulats minéraux. Le tamisage mécanique classiquement employé a tendance à discriminer les particules végétales selon leur largeur tandis que l'analyse d'image permet de déterminer de manière fiable la largeur et la longueur des particules végétales [53].

Le protocole expérimental est le suivant :

On prélève aléatoirement 2 grammes de particules végétales de façon à obtenir un échantillon statistique satisfaisant que l'on dispose sur une feuille noire A3 (29,7×42 mm). Les particules doivent être correctement isolées les unes des autres de façon à ce que le logiciel d'analyse puisse décompter et mesurer toutes les entités. Une acquisition numérique de la feuille est effectuée en résolution maximale et à la lumière naturelle, en prenant soin d'ajuster la photographie selon un cadre tracé à 2 centimètres du bord de la feuille.

Le logiciel « ImageJ© » (Image Processing and Analysis in Java) est utilisé. Pour traiter le cliché, il convient d'abord de faire un calibrage en précisant la longueur du cliché à l'échelle (38 mm). Dans un premier temps, l'image passe en 256 niveaux de gris puis le logiciel peut procéder à une binarisation de l'image permettant de générer deux classes de pixels (noir ou blanc) en définissant un seuil. Le fond apparaît donc en blanc et les particules végétales en couleur noire (Figure 2-5).



**Figure 2-5.** Images binarisées des particules végétales sous ImageJ  
(a) Balles de riz – (b) Chènevotte

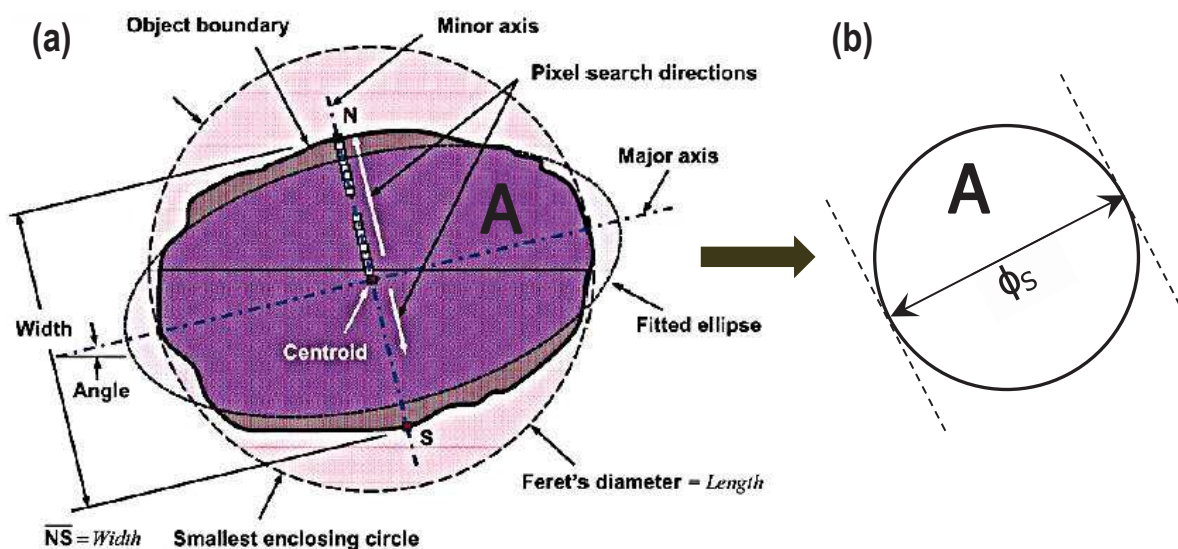
Le logiciel va ensuite détecter le contour de toutes les particules et en faire un décompte. Pour déterminer les paramètres morphologiques de chaque particule, il détermine l'ellipse



qui recouvre la plus grande surface de l'objet par une méthode des moindres carrés [10], [52] (Figure 2-6a). La distribution des paramètres morphologiques sera réalisée en fonction de l'aire des particules.

Les paramètres qui seront retenus pour l'étude de la granulométrie des deux types de particules végétales sont les suivants :

- La longueur de l'axe majeur, qui correspond à la longueur de la plus grande ligne droite pouvant être tracée à l'intérieur de l'objet (major axis en Figure 2-6a).
- La longueur de l'axe mineur, qui correspond à la plus grande ligne droite, toujours à l'intérieur de l'objet, mais perpendiculaire à l'axe majeur (minor axis en Figure 2-6a).
- Le diamètre équivalent surface ( $\phi_s$ ), défini comme le diamètre d'une particule parfaitement circulaire ayant la même aire que la particule réelle (Figure 2-6b), sera calculé selon la méthode précisée dans l'article A (Chap. 3, II.2.1).
- Le ratio d'aspect (ou facteur d'élancement) sera également déterminé comme étant le rapport de l'axe majeur (longueur) sur l'axe mineur (largeur).



**Figure 2-6.** (a) Méthode de l'ellipse selon Igathinathane et al. [52] (b) Diamètre équivalent surface [10]

#### IV. 1. 2. Microscopie électronique à balayage (MEB)

Le microscope électronique à balayage environnemental (MEBE) utilisé est de type FEI Quanta 200 FEG. Ce mode de microscopie offre la possibilité d'observer la microstructure des échantillons dans leur état naturel sans traitement préalable susceptible de les altérer.

On rappelle que la microscopie électronique à balayage permet d'obtenir une image de la surface d'un échantillon avec une résolution pouvant atteindre quelques nanomètres et une très grande profondeur de champ. Un faisceau électronique balaye la surface de l'objet point

par point et lorsqu'un électron incident rencontre un atome de l'échantillon observé, il lui transfère une partie de son énergie, ce qui mène à l'émission d'électrons de faible énergie dits secondaires. Etant donné que ces électrons sont émis à très faible profondeur, la moindre variation de la surface est détectée et permet d'obtenir une image très informative sur la topographie de l'échantillon [151]. C'est le cas des clichés provenant de l'observation des particules végétales ainsi que de la zone de transition avec le liant à base de chaux.

#### IV. 1. 3. Porosimétrie par intrusion de mercure (PIM)

Malgré leur grande fragilité/déformabilité, la distribution porale des particules végétales est investiguée au moyen de la porosimétrie par intrusion de mercure (PIM). L'appareil utilisé est de type Micromeritics Autopore IV 9500.

La porosimétrie par intrusion de mercure permet de caractériser les pores ouverts (non occlus) dont le diamètre est compris entre 3 nm et 800 µm. Grâce à son caractère non mouillant, le mercure pénètre dans les pores sous l'effet d'une pression. Plus la pression est élevée, plus le mercure remplit les pores de plus petites dimensions. Le pore est supposé cylindrique et la relation entre la pression exercée et le rayon du pore est donnée par l'équation de Washburn ci-dessous (Eq. 2-1) [4], [152] :

$$P_{Hg} = \frac{2\gamma_{Hg} \cos \theta}{r_p} \quad (\text{Eq. 2-1})$$

Où  $P_{Hg}$  est la pression d'injection (Pa),  $\gamma_{Hg}$  est la tension superficielle du mercure ( $\text{N.m}^{-1}$ ),  $\theta$  est l'angle de contact du mercure avec le solide ( $^\circ$ ) et  $r_p$  est le rayon du pore (m).

Etant donné que la pression d'intrusion dépend de la taille des pores, le volume introduit à une pression donnée permet de remonter au volume des pores de dimension connue et par conséquent à la distribution poreuse. Le résultat brut d'un essai de porosimétrie au mercure est la caractéristique d'injection qui indique en fait le volume de mercure pénétré dans l'échantillon en fonction de la pression appliquée. Il est ensuite possible d'obtenir la répartition des pores c'est-à-dire le volume incrémental en fonction du diamètre des pores.

On précise que les particules végétales sont préalablement séchées à l'étuve afin ne pas empêcher l'intrusion du mercure dans le réseau poreux par la présence d'eau.

#### IV. 1. 4. Coefficient d'absorption d'eau des granulats végétaux

Le coefficient d'absorption d'eau des granulats végétaux est déterminé par une méthode d'immersion/centrifugation. Après un étuvage à 105°C pendant 48 heures, un échantillon

d'environ 50 grammes de particules végétales est disposé dans une passoire sphérique à maille fine ( $\approx 500\mu\text{m}$ ). Cette dernière est totalement immergée dans l'eau (Figure 2-7a) pendant une durée chronométrée puis lorsque le temps est écoulé, la passoire est placée dans un panier centrifugeur qui est actionné pendant 1 minute pour éliminer l'eau de surface en excès (Figure 2-7b). La passoire est ensuite pesée à l'issue de cette étape pour déterminer le gain massique des particules par reprise en eau (Figure 2-7c) selon l'équation suivante (Eq. 2-2) :

$$\text{Gain massique (\%)} = \frac{M_{\text{Abs}} - M_{\text{S}}}{M_{\text{S}}} \times 100 \quad (\text{Eq. 2-2})$$

Avec  $M_{\text{Abs}}$ , la masse de l'échantillon de particules ayant absorbé une certaine quantité d'eau (g) au bout d'un temps donné et  $M_{\text{S}}$ , la masse sèche initiale (g).

De cette façon, il est possible de connaître la cinétique d'absorption d'eau des granulats en fonction du temps.



**Figure 2-7.** (a) Immersion de la passoire sphérique dans l'eau (b) Centrifugation de la passoire (c) Pesée à des intervalles de temps donnés

#### IV. 1. 5. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)

La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) en mode réflexion totale atténuée (ATR – Attenuated Total Reflection) est utilisée pour identifier les groupements chimiques présents en surface des particules végétales. Cette technique est ici utilisée pour comparer la surface des particules végétales avant et après un traitement à l'eau de chaux saturée. Le protocole de traitement est par ailleurs détaillé dans l'Article C (Chap. 5, II.1.1).

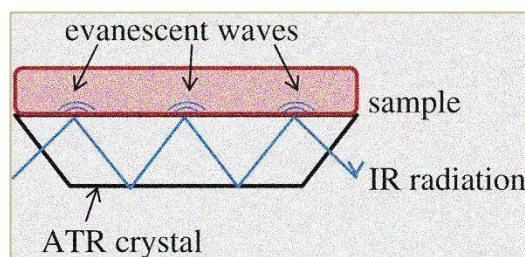
L'appareil utilisé est un spectromètre Brucker IFS66. L'étude de la vibration des liaisons chimiques s'effectue dans le domaine de l'Infrarouge moyen  $400\text{ cm}^{-1} - 4000\text{ cm}^{-1}$ .

La surface d'une particule végétale est exposée à un rayonnement infrarouge entraînant une vibration des liaisons chimiques lorsque la longueur d'onde du faisceau est voisine de l'énergie de vibration des molécules. Chaque groupe fonctionnel possède des fréquences

caractéristiques d'élongation et de déformation (les deux principaux types de vibration), ce qui donne lieu à des bandes d'absorption.

Le spectre infrarouge est défini comme étant la mesure de l'absorption lumineuse (l'absorbance) en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  (cm) traditionnellement exprimée en nombre d'onde ( $1/\lambda$ ,  $\text{cm}^{-1}$ ).

L'échantillon est placé sur un cristal transparent d'indice de réfraction élevé. Le faisceau incident subit une réflexion totale à l'interface cristal-échantillon puis est dirigé vers un détecteur. Cependant, une onde dite évanescente pénètre de quelques micromètres dans l'échantillon et de ce fait, une partie de l'énergie lumineuse est retenue et la réflexion totale est atténuée (Figure 2-8).



**Figure 2-8.** Schéma de principe de l'ATR [153]

L'absorbance est donnée selon l'expression suivante :

$$A = \log \left( \frac{I_0}{I} \right) \quad (\text{Eq. 2-3})$$

Avec  $I_0$ , l'intensité du faisceau incident et  $I$ , l'intensité du faisceau réfléchi.

## IV. 2. Agrobétons

### IV. 2. 1. Estimation des porosités dans les agrobétons

La porosité totale des agrobétons correspond à la somme de la porosité interne aux particules végétales (majoritairement ouverte dans la particule de chènevotte [107]), de la porosité intra-liant et de la macroporosité inter-granulaire.

La macroporosité inter-granulaire  $\eta_{\text{macro}}$ , pouvant atteindre plusieurs millimètres, peut être calculée selon l'expression suivante (Eq. 2-4) :

$$\eta_{\text{macro}}(\%) = \frac{V_{\text{Ep}} - \left( \frac{m_{\text{Gr}}}{\rho_{\text{T}}} \times 10^3 + \frac{m_{\text{chaux}}}{\rho_{\text{AP-L}}} \times 10^3 \right)}{V_{\text{Ep}}} \times 100 \quad (\text{Eq. 2-4})$$

Avec :

- $V_{Ep}$ , le volume d'une éprouvette cylindrique ( $V_{Ep} = 2,091$  Litres),
- $m_{Gr}$  et  $m_{chaux}$ , les masses respectives de granulats et de chaux incorporés pour fabriquer une éprouvette (kg),
- $\rho_T$ , la masse volumique apparente de la particule végétale ( $kg.m^{-3}$ ),
- $\rho_{AP-L}$ , la masse volumique apparente du liant à base de chaux après stabilisation hydrique à 20°C et 50%HR ( $kg.m^{-3}$ ).

La porosité totale  $\eta_{totale}$ , quant à elle, est approximée par l'expression suivante (Eq. 2-5) :

$$\eta_{totale}(\%) = \frac{V_{Ep} - \left( \frac{m_{Gr}}{\rho_S} \times 10^3 + \frac{m_{chaux}}{\rho_{ABS-L}} \times 10^3 \right)}{V_{Ep}} \times 100 \quad (Eq. 2-5)$$

Avec :

- $\rho_S$ , la masse volumique absolue de la particule végétale ( $kg.m^{-3}$ ),
- $\rho_{ABS-L}$ , la masse volumique absolue du liant à base de chaux ( $kg.m^{-3}$ ).

Ces expressions montrent bien que la densité apparente ( $\rho_T$ ) et la densité absolue ( $\rho_S$ ) des particules végétales jouent un rôle respectif sur la macroporosité inter-granulaire et la porosité totale des bétons.

#### IV. 2. 2. Mesure de la conductivité thermique au fil chaud

La mesure de la conductivité thermique  $\lambda$  ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ ) des éprouvettes confectionnées est réalisée au moyen de la technique du fil chaud (hot-wire method). Il s'agit d'une méthode en régime quasi-établi qui mesure simultanément un flux de chaleur, lié à la puissance fournie, et une élévation de température. Le modèle utilisé fait l'hypothèse d'un transfert de chaleur unidirectionnel. Le fil délivre une puissance constante  $P$  et la variation de température du fil  $T^\circ C$  est mesurée grâce à un thermocouple soudé. Le principe théorique se base sur une géométrie cylindrique du fil chaud.

L'équation de la chaleur en coordonnées cylindriques s'écrit (Eq. 2-6) [154] :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \left( \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \left( \frac{1}{\alpha} \right) \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right) \quad (Eq. 2-6)$$

Avec :

- $r$ , la distance entre la source de chaleur et le point où est mesurée la température  $T^\circ C$ ,

- $\alpha$ , le coefficient de diffusivité thermique ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ), relié à la conductivité thermique par la relation suivante (Eq. 2-7) :

$$\alpha = \frac{\lambda}{\rho C_m} \quad (\text{Eq. 2-7})$$

Avec :

- $\lambda$ , la conductivité thermique ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ),
- $\rho$ , la masse volumique apparente du matériau ( $\text{kg.m}^{-3}$ ),
- $C_m$ , la capacité thermique massique ( $\text{J.K}^{-1}.\text{kg}^{-1}$ ).

A partir de l'équation de la chaleur (Eq. 2-6), on montre que pour des temps longs, la variation de température  $T(t)$  est asymptotique au terme développé ci-dessous (Eq. 2-8) [155] :

$$T(t) = \frac{P}{4\pi L \lambda} \ln(t) \quad (\text{Eq. 2-8})$$

Où  $P$  est la puissance fournie (W),  $L$  est la longueur du fil chaud (m),  $\lambda$  est la conductivité thermique ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ).

Des compléments à la méthode de mesure de la conductivité thermique se trouvent dans l'article A (Chap. 3, II.2.3.2).

L'appareil utilisé pour la mesure de conductivité thermique présentée dans l'article A est un CT-Mètre développé par le CSTB (Centre Scientifique et Technique du Bâtiment) et conforme à la norme NF EN 993-15 (Figure 2-9).



**Figure 2-9.** Appareil (a) et sondes (b) de mesure de la conductivité thermique (CT-Mètre)



L'organe de commande est chargé de générer la puissance de chauffe et d'interpréter la courbe d'élévation de la température induite dans le matériau (Figure 2-9a). Les sondes thermiques transmettent la puissance de chauffe et recueillent la température induite à l'aide du thermocouple (Figure 2-9b). Elles sont disposées entre 2 éprouvettes dont la surface est plane.

L'appareil peut mesurer la conductivité thermique  $\lambda$  de 0,01 à 10 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> avec une précision de  $\pm 5\%$  et une reproductivité de  $\pm 2\%$ . La validité de l'essai est vérifiée grâce à un coefficient de corrélation donné en fin de mesure et devant rester supérieur à 0,98.

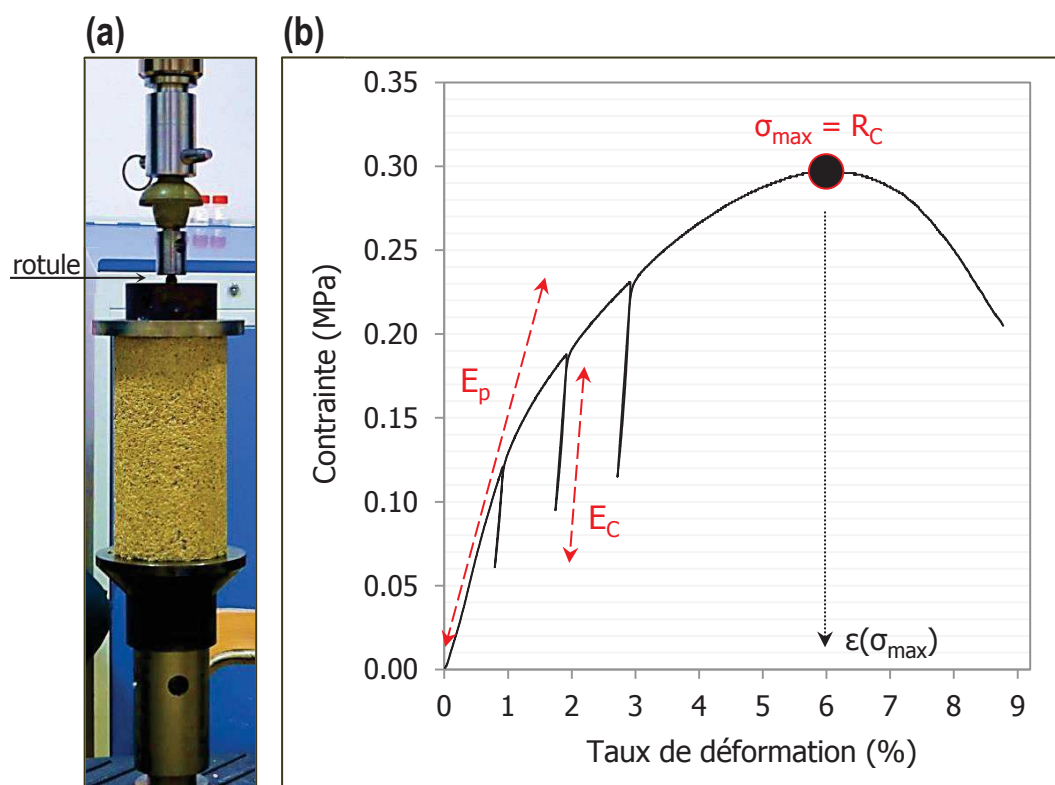
Les paramètres choisis pour la mesure (puissance de chauffe, temps de mesure, variation de température maximale) sont détaillés dans l'article A.

#### IV. 2. 3. Essais de résistance en compression

Les essais de compression sur les éprouvettes  $\Phi 11 \times 22$  cm<sup>3</sup> (Figure 2-10a) sont réalisés avec une presse électromécanique MTS Criterion (MTS Criterion Series 40) et sont menés en déplacement contrôlé avec une vitesse de charge égale à 5 mm.min<sup>-1</sup> et trois cycles de chargement/déchargement effectués pour 1%, 2% et 3% de déformation. Le déchargement s'effectue jusqu'à ce que la contrainte soit égale à 50% de la contrainte initialement enregistrée avant le début du cycle. La courbe typique contrainte-déformation  $\sigma = f(\epsilon)$  est représentée en Figure 2-10b. Compte tenu de la rigidité du bâti de la presse largement supérieure à celle des éprouvettes, la déformation est simplement déterminée en rapportant la variation de hauteur de l'éprouvette (i.e. le déplacement de la traverse durant l'essai) à la hauteur initiale de l'éprouvette (soit 22 cm). Les surfaces des éprouvettes n'étant pas parfaitement parallèles, un plateau avec rotule est utilisé pour transmettre les sollicitations de façon homogène au matériau.

La résistance en compression du matériau ( $R_c$ ) correspond à la contrainte maximale  $\sigma_{\max}$  et la déformation à rupture  $\epsilon(\sigma_{\max})$  peut également être déterminée (Figure 2-10b).

On considère que les bétons de chanvre présentent un comportement quasi-élastique en début d'essai ( $\epsilon < 1\%$ ) [25], [26]. Certains auteurs [10], [26] calculent alors le module d'Young comme la pente à l'origine de la courbe  $\sigma = f(\epsilon)$ , noté  $E_p$  sur la Figure 2-10b. Dans sa thèse, Chamoin [5] définit ce module comme apparent ( $E_p$ ) et il détermine un module d'élasticité correspondant au module réversible des cycles de chargement/déchargement (noté  $E_c$  en Figure 2-10b). Cerezo [26] montre bien le comportement hystérétique lié au caractère inélastique du matériau après un certain taux de déformation et propose d'évaluer le module d'Young comme la pente de la courbe lors de la phase de recharge du premier cycle de déchargement/rechargement. Dans ce travail de thèse, le module d'élasticité  $E_c$  sera principalement considéré sur les cycles de chargement.



**Figure 2-10.** (a) Montage de l'essai de compression (b) Courbe  $\sigma = f(\epsilon)$  et caractéristiques mécaniques ( $R_C$  : Résistance en compression,  $E_p$  : module apparent,  $E_c$  : module élastique)

#### IV. 2. 4. Analyse thermogravimétrique (ATG)

La caractérisation du durcissement du liant à base de chaux est menée au moyen d'une technique d'analyse thermique permettant de quantifier les phases minérales présentes : l'analyse thermogravimétrique (ATG). Il s'agit de suivre précisément la variation de masse d'un échantillon soumis à une rampe de température dans une atmosphère contrôlée.

L'appareil utilisé est de type Netzsch STA 409. Le mode de prélèvement et de préparation du liant à cœur des bétons avant son incorporation dans le four de l'ATG sont décrits plus spécifiquement dans l'article B (Chap. 4, II.3.3) et dans l'article C (Chap. 5, II.5). La rampe de température est appliquée de 20°C à 950°C avec une vitesse de chauffe de 10°C.min<sup>-1</sup> sous air.

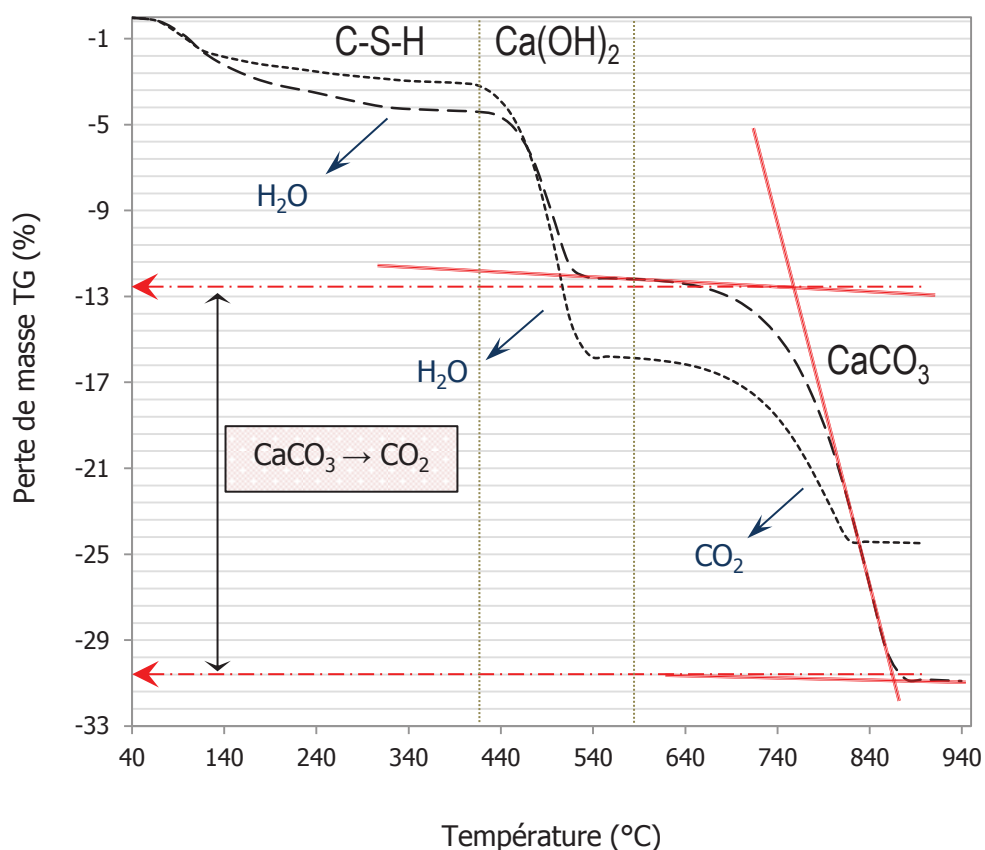
La courbe de perte de masse en fonction de la température (donnée en Figure 2-11) donne la décomposition des espèces minéralogiques sous forme de paliers décroissants. On peut effectivement distinguer 3 pertes de masse différentes lors de l'analyse du liant durci NHL3.5/CL90-S :

- Le départ de l'eau des pores avant 100°C (eau libre) et de l'eau chimiquement liée aux hydrates de type C-S-H sous forme continue entre 100°C et 400°C.

- La déshydroxylation de  $\text{Ca(OH)}_2$  entre 400°C et 550°C suivant l'équation (Eq. 2-9) :



- La décarbonatation de  $\text{CaCO}_3$  entre 650°C et 850°C suivant l'équation (Eq. 2-10) :



**Figure 2-11.** Méthode des tangentes pour quantifier les espèces minéralogiques en présence au sein du liant durci à partir des courbes TG (% de perte de masse)

Par la méthode des tangentes, il est possible de déterminer le pourcentage d'eau liée à  $\text{Ca(OH)}_2$  et le pourcentage de perte de  $\text{CO}_2$  par décarbonatation de  $\text{CaCO}_3$  (exemple donné en Figure 2-11). Les teneurs massiques en  $\text{Ca(OH)}_2$  et en  $\text{CaCO}_3$  ainsi que le taux de carbonatation pourront finalement être déterminés. Les expressions permettant d'effectuer ces calculs sont détaillées dans l'Article B (Chap. 4, II.3.3).

## IV. 3. Mortiers à base de chaux

### IV. 3. 1. Caractérisation mécanique

Les essais mécaniques sur mortiers prismatiques  $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$  sont menés selon la norme NF EN 459-2 [96]. La presse utilisée est une 3R (module RP40).

Les essais sont réalisés en force contrôlée avec un taux de charge de  $10 \text{ N.s}^{-1}$  pour la flexion et de  $50 \text{ N.s}^{-1}$  pour la compression. Les demi-prismes issus des essais de flexion sont utilisés pour les essais de compression.

### IV. 3. 2. Caractérisation du durcissement

La caractérisation du liant à cœur des mortiers de chaux est également menée par ATG suivant une méthode identique à celle exposée précédemment pour les agrobétons.

Sur les mortiers, il est possible de collecter des fragments ayant conservé leur cohésion mécanique suite aux essais de flexion 3 points. Ces fragments sont utilisés pour la réalisation de sections polies afin d'observer la microstructure au MEB en électrons rétrodiffusés (BSE). En microscopie électronique à balayage, la trajectoire de certains électrons incidents change lorsqu'ils rencontrent les atomes de la matière observée. Cela s'effectue quasiment sans perte d'énergie à l'inverse des électrons secondaires. On parle alors d'électrons rétrodiffusés. Le rendement de rétrodiffusion est lié au numéro atomique  $Z$  de l'atome de la matière. En mode rétrodiffusé (Back-Scattered Electrons : BSE), les éléments lourds apparaissent de façon plus claire que les éléments légers (contraste de phase). Ce type d'image va donc fournir des informations qualitatives sur la composition chimique élémentaire de l'échantillon observé voire une étude quantitative de la minéralogie en fonction des niveaux de gris [151]. L'observation des clichés BSE permettra dans ce travail d'observer les silicates de calcium anhydres ( $\text{C}_2\text{S}$ ) et leur couronne d'hydratation ( $\text{C-S-H}$ ).

# Chapitre 3

## **De la caractérisation des particules végétales à la formulation des agrobétons**

### **Étude des propriétés thermiques et mécaniques à court terme**

#### **Préambule**

La première partie du travail de thèse concerne la recherche de formulations optimisées pour l'étude des propriétés thermiques et mécaniques de bétons à base de chaux et de balles de riz. Il s'agira, tout au long de l'exposé, d'effectuer une étude comparative entre le béton chaux-chanvre et un matériau innovant où le granulats de chènevotte est remplacé par la balle de riz. Contrairement au béton de chanvre qui a fait l'objet d'un certain nombre de travaux de recherche sur sa formulation et ses propriétés, aucune étude scientifique n'avait été menée jusqu'à présent au sujet de l'association de balles de riz avec un liant à base de chaux pour fabriquer un béton de remplissage léger (densité sèche apparente inférieure à  $800 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et isolant (conductivité thermique sèche inférieure à  $0,2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) équivalent au béton de chanvre.

La démarche suivie consiste alors à s'appuyer sur les dosages utilisés pour la confection du béton de chanvre, notamment l'application dite « MUR » selon les règles professionnelles de la Construction en Chanvre et à adapter ensuite la densité à l'état frais et le dosage en eau en fonction des caractéristiques intrinsèques de la balle de riz naturelle.

Ce chapitre s'intéresse donc dans un premier temps à la caractérisation physique et morphologique des deux types de granulats végétaux qui apportera également des éléments pour appréhender les propriétés finales des bétons.

Les éprouvettes sont ensuite confectionnées avec deux objectifs principaux :

- (1) Effectuer une mesure de la conductivité thermique des matériaux en fonction du dosage en granulats et de la densité apparente.
- (2) Evaluer les caractéristiques mécaniques en compression après 30 jours et 60 jours de cure en ambiance contrôlée à 20°C et 50%HR ou suite à une exposition à l'extérieur sous abris afin d'étudier le matériau en conditions extérieures réelles.

Ce chapitre concerne un premier article (A) publié dans « Construction and Building Materials »

## Article A

(Published 27 August 2014 in Construction and Building Materials)

### Use of raw rice husk as natural aggregate in a lightweight insulating concrete: An innovative application

Morgan Chabannes, Jean-Charles Bénézet\*, Laurent Clerc, Eric Garcia-Diaz

C2MA, Ecole des Mines d'Alès, 6 Avenue de Clavières, 30319 Alès Cedex, France

\*corresponding author: Jean-Charles.Benezet@mines-ales.fr

#### ABSTRACT

As the building sector presents major impacts on the natural environment, the development of eco-friendly concrete materials using plant aggregates has emerged as a high priority. This kind of concrete allows moving towards a low carbon material with good thermo-physical properties. This is the case of hemp concrete made out of hemp hurd mixed with a lime-based binder. Hemp concrete is aimed at replacing usual systems based on concrete blocks and mineral wool. In this way, it can qualify as a multifunctional material which takes a clear position regarding the energy efficiency and the optimization of building envelopes.

This study deals with the development of an innovative insulating concrete having the same application than hemp concrete one but using rice husks.

Having examined physical and structural characteristics of plant aggregates, specimens made out of whole rice husks and a lime-based binder were manufactured by mixing and mechanical tamping. Both thermal and mechanical properties of the final concrete materials

were studied in comparison to hemp concrete designed with the same process. The effects of an outdoor exposure of specimens on the mechanical strength are discussed and the binding matrix mineral phases considered.

It is established that for a same binder on aggregates mass ratio, the target dry density of rice husk concrete is necessarily higher than that of hemp concrete due to the different physical and morphological properties of rice husks. Thermal measurements show that rice husk concrete can compete with hemp concrete in terms of thermal insulation with a dry thermal conductivity ranging from about  $0.10 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  to  $0.14 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  depending on the mix proportioning. Compression test results on a defined mixture intended to be used as a filling material in a wall timber frame highlight lower mechanical performances for rice husk concrete with an average compressive strength of  $0.33 \pm 0.03 \text{ MPa}$  at 60 days compared to  $0.48 \pm 0.02 \text{ MPa}$  for hemp concrete.

## Keywords

Rice husks, Hemp hurd aggregates, Lime binder, Porosity, Thermal conductivity, Mechanical testing, Outdoor exposure

## I. Introduction

Nowadays, the main challenges facing the building sector are focused on the improvement of its energy efficiency and the reduction of its environmental impact. In this context, eco-friendly materials using renewable and local resources are in full development. Over the last years, a significant increase of various research activities about eco-materials using vegetable resources has been reported. Examples of studied materials are hemp [17]–[19] and bagasse fibers [156], flax shives [39], [40], hemp hurds [25], [43], [157], [158] or sawdust [30], [31].

This paper refers to lightweight insulating concretes using vegetable aggregates and mineral binders [25], [43], [157], [158]. Many works have been carried out on the combination of hemp hurd aggregates which correspond to the woody core of the hemp stem and alternative lime-based binders. The resulting material is called Lime and Hemp Concrete (LHC). As it is fundamental to select carefully the raw materials to design sustainable and more comfortable low-carbon buildings, it makes sense to create interesting links between agriculture and building industry. The use of plant aggregates like hemp hurds benefits from a low energy required to transform the agricultural crops into hurds. Add to that, their neutral carbon footprint. The fact is that plants store carbon during their growth as a result of photosynthesis and the carbon remains locked within the plant material until it



decays. Moreover, the absorption of CO<sub>2</sub> by lime partially offsets its release during the production of the binder. In this way, the association of plant-derived particles with a lime-based binder allows to design a carbon negative building material [159]. Furthermore, using lime helps regulate temperature and humidity in building because it is moisture permeable [30], [32].

With a very low thermal conductivity generally less than 0.2 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> [25] depending on the mix formulation, LHC meets the thermal requirements becoming increasingly demanding. This excellent thermal behavior is due to the interconnected network of porosity which characterizes this material. Indeed, three levels of porosity are mentioned, that of the binder (nanometric), inside hemp particles (on average 10 µm) and the intergranular macroporosity that can reach up to several millimeters [25], [105]. LHC is mainly used in individual housing as a filling material and it is often cast around load-bearing wooden structures for wall application. The corresponding mixture (called Wall mixture) has a dry density of about 450 kg.m<sup>-3</sup> [25] and a binder on aggregates mass ratio of 2. It is a compromise between thermal conductivity and compressive strength, which does not exceed 0.5 MPa after 60 days when the material is placed with a reasonable compaction load [25], [26]. It seems clear that the mechanical properties of these plant-based concretes may be considered as the main weakness point. Indeed, hemp-based concretes cannot be used as load-bearing materials.

This study deals with the use of rice husks to design a lightweight insulating concrete in the same way as for LHC. In research studies, the vast majority of lignocellulosic particles associated with a mineral binder come from plant stems, as it is the case of hemp hurds. Rice husks come from a totally different part of the plant since they correspond to the protective shell of the rice grain.

The growing of rice in France is limited to the Camargue area. Rice husks can be considered as agro-industrial by-products coming from the rice hulling. These crop residues represent about 20 wt.% of the whole grain paddy rice harvested on spikelets [129]. Hence, rice farming produces nearly 20,000 tons per year of rice husk in France.

Currently, the use of rice husks is highly limited, these latter being regarded as waste materials often buried in the ground or used as a fuel. Indeed, rice husks can be consumed for electricity generation because of their high calorific value. However, the incineration process is dangerous to human health and to the environment. Therefore, rice husks cause critical problems in rice growing areas because significant volumes are generated and not used in a beneficial way [130].

The use of raw and whole rice husks in concrete materials without any burning has rarely been investigated. Few studies have examined the association of whole rice husks with hydraulic Portland cement. Most of the time, concrete materials are designed with a very small volume fraction of rice husks and sometimes even with sand. In these works [1], [2],

[130], [139], [143], [147], [160], specimens are essentially studied in terms of mechanical performances. The density of the mortars and concretes is most of the time higher than 800 kg.m<sup>-3</sup>. Therefore, these materials are not really insulating but halfway between insulating and light structural according to some authors [2], [147] who have proposed a classification of concretes depending on the density and the compressive strength (Table 3-1).

**Table 3-1.** Lightweight concrete categories

| Categories                            | Insulating*           | Moderate   | Light structural |
|---------------------------------------|-----------------------|------------|------------------|
| Density (kg.m <sup>-3</sup> ) [147,2] | Less than 800 or 1000 | 800 - 1500 | 1500 - 2000      |
| Compressive strength (MPa) [2]        | Less than 2           | 2 - 15     | More than 15     |

\*Typically LHC

The approach of this paper is quite original since cereal husks are used in a lightweight insulating concrete designed with an identical way as for LHC. In this regard, rice husks will be considered as natural aggregates like hemp hurd ones and re-used as raw products.

Using rice husks in Languedoc-Roussillon to design an eco-friendly concrete like LHC is particularly relevant since rice husks are produced in Camargue, a natural area located in the heart of the region. This provides a perspective to design an innovative building material using a locally available agricultural waste.

Rice husks present many substantial advantages. They do not flame or smolder easily because of their peculiar silica-cellulose structural arrangement [139]. Moreover, given that husks do not biodegrade or burn very easily, they are sometimes free-of-charge. Add to that the availability of rice husks throughout the year because most farms store rice and process it on a daily basis. This is not the case of hemp which is grown as a break crop and harvested after 4 months [161]. Furthermore, hemp hurds result from an industrial grinding process to separate hurds from the fibers whereas rice husks are used as they stand, requiring no shredding.

The first objective of this work was to investigate the main key characteristics of rice husks, namely their physical and structural characteristics. Secondly, specimens made up of rice husks and a lime-based binder were designed on the basis of mix proportions used for LHC. This study aims at developing a husk-based insulating concrete with a dry density less than 800 kg.m<sup>-3</sup>. Then, the experimental program pays particular attention to the macroscopic properties of this innovative building material. As for the characterization of the raw particles, macroscopic properties were experimentally compared with those of a hemp-based concrete. Thermal properties were investigated on specimens designed in various mix proportions by changing the binder on aggregates mass ratio whereas compressive strength tests were conducted on the wall timber frame mixture previously stated.

To the best of our knowledge, only the study of Arnaud and Gourlay [25] examined the influence of different established relative humidity on the mechanical behavior of LHC in laboratory conditions. In the present paper, the influence of two kinds of curing conditions on the mechanical behavior was studied. Some specimens were cured indoors, in a climate-controlled room and some were cured outdoors until compressive tests after 30 and 60 days that is to say these specimens were exposed to temperature and humidity variations.

## II. Materials and methods

### II. 1. Raw materials

#### II. 1. 1. Natural particles

Two different crop by-products were used for this work.

- The first one was a commercial hemp hurd (FRD, Troyes) and it was taken as reference as it is already used in association with a lime-based binder and marketed for individual housing construction.
- Rice husk was selected as a local resource, coming from a nearby rice field (Biosud, Arles). In the present paper, rice husks were regarded as new aggregates. The variety corresponds to natural husks, which means that they have not undergone any parboiling.

#### II. 1. 2. Mineral binder

The binder used in this study was a 50/50 wt.% combination of natural hydraulic lime NHL3.5 and hydrated calcic lime CL90-S (EN 459-1 standard). Material density values are presented in Table 3-2.

**Table 3-2.** Material densities of the binders

| Lime                     | Loose bulk density (kg.m <sup>-3</sup> ) | Absolute density (kg.m <sup>-3</sup> ) |
|--------------------------|--|--|
| CL90-S [43]              | 450                                      | 2525                                   |
| NHL3.5 [94], [98], [162] | 846                                      | 2700                                   |

Aerial calcic lime (CL90-S) is more than 85% of calcium hydroxide Ca(OH)<sub>2</sub> [43] and has been chosen for its great capacity to generate carbonation reactions. Once mixed within the concrete and in the presence of carbon dioxide, carbonation of the lime binder takes place, converting calcium hydroxide into calcium carbonate (CaCO<sub>3</sub>). This process is very slow. It

starts mostly when the binder has dried enough and it can last for months even years.

Hydraulic lime (NHL3.5) was used to give more reactivity and short-term resistance to the concrete material, due to the presence of dicalcium silicates ( $C_2S$ ), these reacting with water to form calcium silicate hydrates (C-S-H) and Portlandite.

## II. 2. Experimental procedures

### II. 2. 1. Characterization of the natural particles

#### II. 2. 1. 1 Structural and morphological analysis

To study size distribution and morphology of natural particles, an image analysis method was chosen. This method has proved its worth to obtain an efficient granulometric analysis of hemp hurd aggregates [43] whereas some studies have shown the inconsistency of mechanical sieving for particulate materials with an elongated shape [52], [53]. Unlike the use of standard sieves which ultimately separate particles according to their width, image analysis allows to represent the minor and the major axis (width and length). The equivalent area diameter ( $\Phi_S$ ) can be calculated as described below (Eq. 3-1) [43]:

$$\Phi_S = \sqrt{\frac{4 \times \text{Area}}{\pi}} \quad (\text{Eq. 3-1})$$

Rice husks and hemp hurds were spread on a sheet of black paper in a manner that particles do not overlap one another. Image processing using ImageJ involves the creation of binary images of the particles from color images (digital acquisition). The software routine analysis generates the basic dimensions of the particles.

Plant particles microstructure observations were realized by means of scanning electron microscopy (SEM) FEI 200 Quanta FEG.

Mercury intrusion porosimetry (Micromeritics Autopore IV 9500) was used to evaluate the pore size distribution of the internal open porosity of the natural particles.

#### II. 2. 1. 2 Water sensitivity of particles

In order to evaluate the water absorption ability of the natural particles, these latter were previously dried for 48 hours at 105°C. Then, the water absorption tests consisted in immersing the particles in water during 8 hours and following the mass uptake registered at appropriate intervals of time. Particles were placed in a water permeable spherical strainer

which was immersed in tap water. For each measurement, the strainer was introduced into a spinner and centrifuged during 1 minute. This process allows removing excess water present between the particles.

## II. 2. 2. Concrete design

Different mixtures corresponding to different binder on aggregates mass ratios (B/A) were used for the study of thermal conductivity in order to compare the thermal behavior of lime and rice husk concrete (LRC) to that of lime and hemp concrete (LHC). Concerning the mechanical properties, it was decided to test the mixture for which  $B/A = 2$  called wall mixture according to LHC construction rules [25]. Mix proportions and notations are presented in Table 3-3.

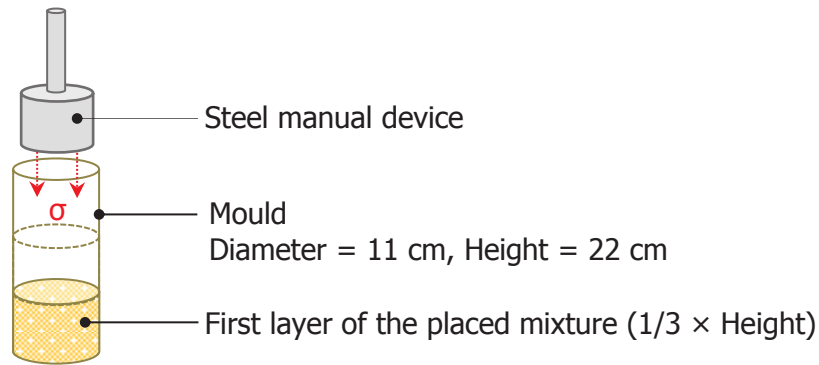
**Table 3-3.** B/A mass ratios

| B/A mass ratio | LRC     | LHC                  |
|----------------|---------|----------------------|
| 1.5            | LRC-1.5 | LHC-1.5              |
| 2              | LRC-2   | LHC-2 (Wall mixture) |
| 2.5            | LRC-2.5 | LHC-2.5              |

One of the difficulties encountered for designing hemp concrete is the competition for water between the binder and hemp hurds during the manufacture of the material. Hemp hurd vessels absorb a lot of water, this creating a problem for the binder which needs to hydrate and disrupting the setting of the concrete [25], [43], [157], [158]. For this reason, it is essential to take into account the water absorption capacity of the particles.

Rice husks and hemp hurds were first prewetted in the mixing drum during 5 minutes. This prewetting water was chosen according to the water absorption test. The lime-based binder was added in a second time and the mixing water was finally introduced. The total mixing time does not exceed 12 minutes.

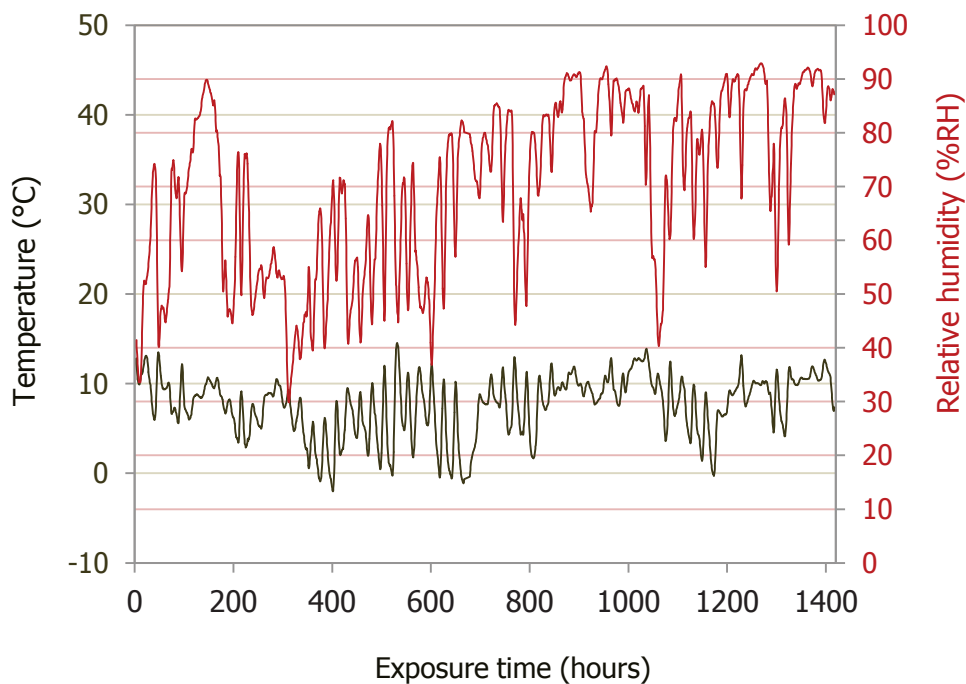
The mixture was then placed in cylindrical  $\Phi 11 \times 22 \text{ cm}^3$  moulds and compacted in 3 layers using a steel manual device (Figure 3-1). The height of a single layer is equal to one-third of the total height of the concrete specimen (22 cm) and the mass of a single layer is equal to one-third of the total mass desired for the specimen, this mass being calculated according to the target density of the freshly-mixed concrete. In this way, the compaction level is the same for all specimens of a batch having a same B/A mass ratio.



**Figure 3-1.** Compaction process of the mixture in the mould

Specimens were demoulded after 24 hours and two different kinds of curing conditions were applied. Specimens only dedicated to thermal measurements were cured in a climate-controlled room at 20°C and 50%RH until hydric stabilization.

In order to study the material in building site conditions that is to say in external conditions, one half of the LHC-2 and LRC-2 specimens dedicated to compressive strength tests were cured indoors (20°C – 50%RH) and the other half outdoors. For these specimens cured outdoors under shelter, a data acquisition system was installed to record temperature and relative humidity in the air. The profile of temperature and relative humidity is reported in Figure 3-2. Specimens were cured outdoors from the beginning of November to the beginning of January (60 days).



**Figure 3-2.** Data acquisition of temperature and relative humidity during 2 months

## II. 2. 3. Macroscopic properties of concrete materials

### II. 2. 3. 1 Porosity estimation

Small specimens based on the 50/50 wt.% combination of limes with water on binder mass ratio of 0.8 were manufactured to determine the apparent density of the binder paste. It was determined after the hydric stabilization stage and was  $840.3 \pm 31.8 \text{ kg.m}^{-3}$  ( $\rho_{\text{AP-L}}$ ).

The volume of lime and natural particles introduced in a specimen was determined using  $\rho_{\text{AP-L}}$  and the true density of rice husks and hemp hurds ( $\rho_{\text{T}}$ ) knowing the mass quantity of each component introduced in the mould. The intergranular porosity (called macroporosity) within the concrete can be deduced with the total volume of the specimen which is known.

The same calculation was done to determine the total porosity (including also the microporosity of the binder and the internal porosity of the natural particles) but using this time the absolute density of lime  $\rho_{\text{ABS-L}} \approx 2610 \text{ kg.m}^{-3}$  calculated from those of both limes reported in Table 3-2 and the absolute density of the natural particles ( $\rho_{\text{S}}$ ).

|                       |   |
|-----------------------|---|
| $\rho_{\text{AP-L}}$  | Apparent density of the hydrated lime-based binder when water excess is eliminated* |
| $\rho_{\text{ABS-L}}$ | Absolute density of the lime-based binder   |
| $\rho_{\text{T}}$     | True density of the natural particles (real density of a single particle)           |
| $\rho_{\text{S}}$     | Absolute density of the natural particles (pycnometric)                             |

\*The real porosity can change after several months. Indeed  $\text{CaCO}_3$  is denser than  $\text{Ca(OH)}_2$  and lime microporosity can progressively decrease due to lime carbonation.

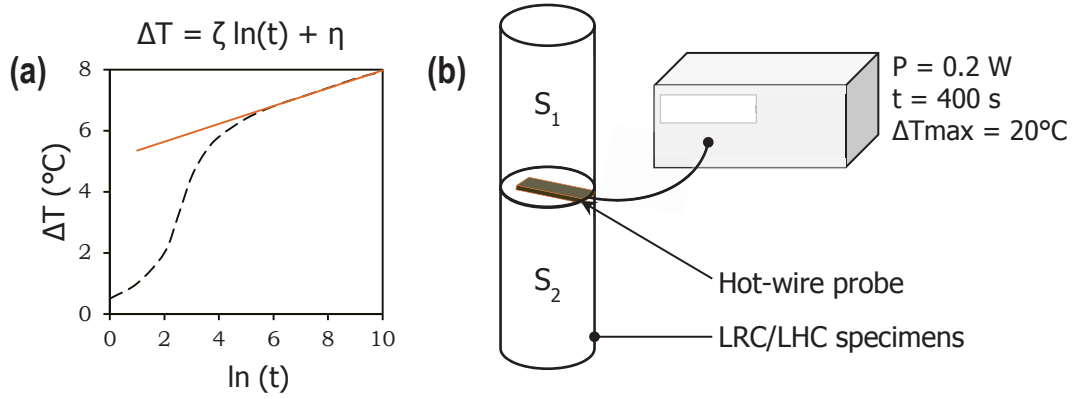
### II. 2. 3. 2 Thermal measurements

Thermal conductivity of LRC and LHC specimens was measured with a thermal apparatus (CT-Mètre NF EN 993-15) using the transient hot-wire method (NF EN ISO 8894). This method consists in generating a heat flux by Joule effect and measuring the temperature variation over time by means of a thermocouple. This latter is associated with the heating element in the hot-wire probe. The rise in temperature measured by the sensor is limited to  $20^\circ\text{C}$  and the heating time is dependent on the material, here taken as 400 s. The temperature variation ( $\Delta T$ ) is related to the electrical power ( $P$ ), the wire length ( $L$ ) and the thermal conductivity ( $\lambda$ ). If the temperature is measured at times  $t_1$  and  $t_2$ , the thermal conductivity is given by Eq. 3-2 [163]:

$$\lambda = \frac{P}{4\pi L \Delta T} \ln\left(\frac{t_2}{t_1}\right) \quad (\text{Eq. 3-2})$$

The typical thermogram representing  $\Delta T$  as a function of  $\ln(t)$  is represented in Figure 3-3a.





**Figure 3-3.** (a) Hot wire typical thermogram (b) Thermal conductivity measurement with the thermal probe

Thermal conductivity is calculated using the long-term slope  $\zeta$  (Figure 3-3a) and it is expressed as follows (Eq. 3-3):

$$\lambda = \frac{P}{4\pi L} \times \frac{\Delta \ln(t)}{\Delta T} = \frac{P}{4\pi L \zeta} \quad (\text{Eq. 3-3})$$

Measurements were done by placing the thermal probe between two specimens of a same mixture ( $S_1$  and  $S_2$  in Figure 3-3b). Concrete specimens were cured at  $20^\circ\text{C}$  and 50 %RH. Thermal measurements were first performed after hydric stabilization. In a second time, the specimens were passed through the drying oven at  $60^\circ\text{C}$ . They were cooled to  $20^\circ\text{C}$  in a tight plastic bag before measurement in dry conditions. Three specimens of each mixture (LHC/LRC for B/A mass ratio ranging from 1.5 to 2.5) were tested.

#### II. 2. 3. 3 Compressive strength testing

Compressive strength measurements were made after 30 days and 60 days of setting using an electromechanical testing machine (MTS Criterion). Displacement control tests were conducted with a loading rate of 5 mm/min and the load was applied with a spherical seat on the upper plate. Cycles of loading/disloading were applied for 1%, 2% and 3% strain. The disloading was performed until the stress reaches 50% of its initial value.

#### II. 2. 3. 4 Matrix analysis by means of thermogravimetric analysis (TGA)

Mineralogical investigation of the binding matrix was performed using a STA 409 Cell, Netzsch, thermogravimetric analyzer (TGA). After compressive strength tests, powdered matrix samples were collected in the bulk of the specimens (LRC-B or LHC-B) and on the surface (LRC-S or LHC-S). These powdered samples were passed through a sieve with a 80

$\mu\text{m}$  mesh before being analyzed by TGA. Thermal degradation was conducted from 20°C to 900°C at 10°C.min<sup>-1</sup> under air atmosphere with about 150 mg samples.

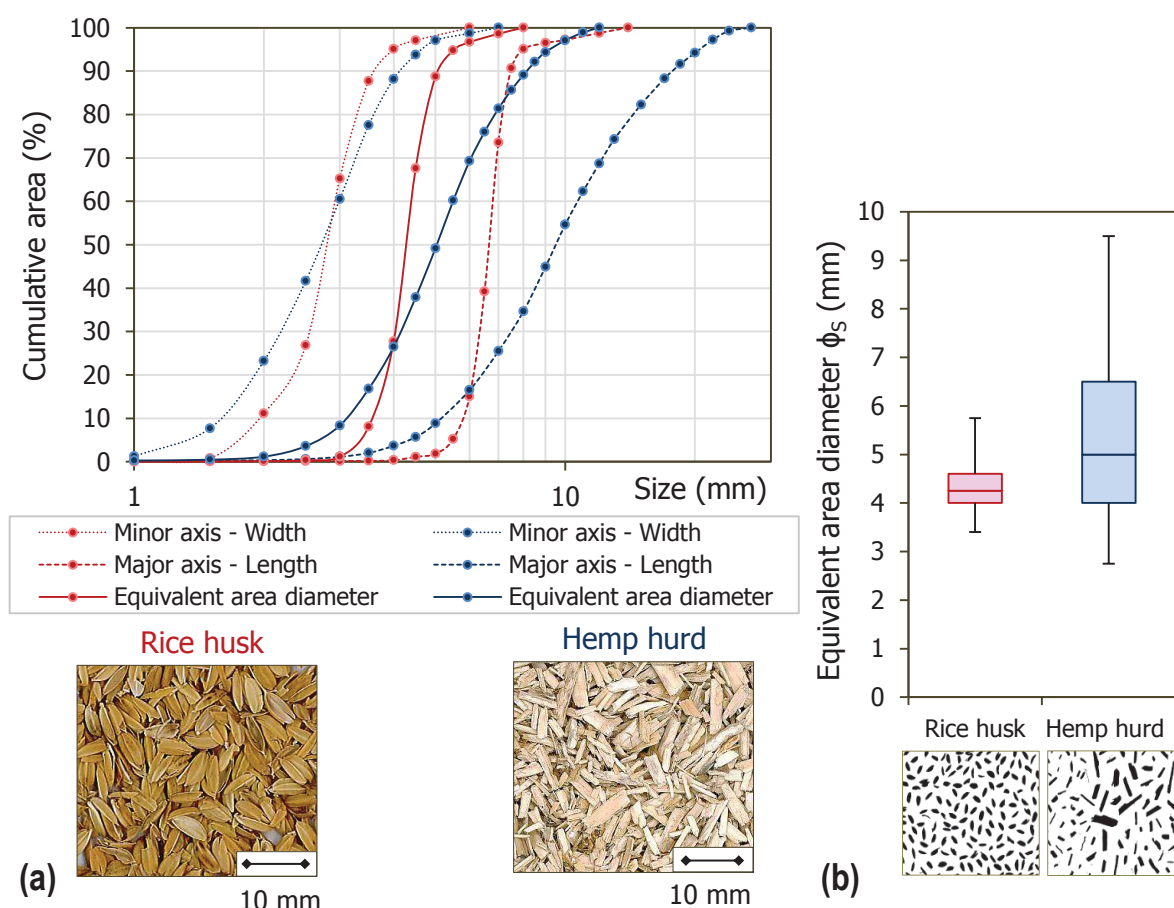
### III. Results and discussion

#### III. 1. Characterization of the vegetable particles

##### III. 1. 1. Physical and morphological properties

The use of cereal husks as they stand on the one hand and shreds coming from a stem on the other hand requires special attention on physical and structural properties of the particles that will be used in this study to design an insulating concrete.

Particle size distribution was investigated on rice husks and hemp hurds (Figure 3-4).



**Figure 3-4.** (a) Cumulative granulometric distribution of rice husks and hemp hurd aggregates (b) Statistical dispersion of the equivalent area diameter and binary images from ImageJ

Some critical distinctions can be done between the two kinds of aggregates. Rice husks width ranges from 1 to 4 mm and the maximum length is about 10 mm. In the case of hemp hurds, the width distribution is about the same but the length can reach up to 27 mm. As a consequence, the elongation factor (EF), defined here as the length on width ratio ( $L/W$ ) is higher for hemp hurd aggregates (Table 3-4). This reflects a more spherical shape for rice husks. Moreover, granulometric distribution of rice husks presents a very small size range in comparison to hemp hurd aggregates (Figure 3-4a). This is the case for all the size parameters. The statistical dispersion of the equivalent area diameter represented in Figure 3-4b highlights the major difference between rice husks for which the distribution is nearly monodisperse and hemp hurd aggregates characterized by a significant dispersion as it can be noticed for the equivalent area diameter. The box plots in Figure 3-4b indicate that 90% of rice husks have an equivalent area diameter between 3.40 and 5.75 mm whereas it is between 2.75 and 9.50 mm for hemp hurd aggregates.

**Table 3-4.** Geometrical characteristics for a cumulative distribution of 50%. Median width ( $W_{50}$ ), equivalent area diameter ( $\Phi_{S-50}$ ), length ( $L_{50}$ ) and elongation factor ( $EF_{50}$ )

| Median parameters             | Rice husk | Hemp hurd |
|-------------------------------|-----------|-----------|
| $W_{50}$ (mm)                 | 2.75      | 2.70      |
| $\Phi_{S-50}$ (mm)            | 4.25      | 5         |
| $L_{50}$ (mm)                 | 6.70      | 9.90      |
| $EF_{50}$ ( $L_{50}/W_{50}$ ) | 2.44      | 3.67      |

The small size range of rice husks is due to their origin, since it is known that rice husks dimensions are fully dependent on rice grains size, the latter showing a very low variation in a representative statistical sample. In contrast, hemp hurd aggregates come from an industrial grinding process of hemp stems which necessarily generates a more dispersed distribution. This more irregular shape is due to the shredding action of the size reduction machinery.



The granulometric study of the natural particles provides valuable information given that it conditions the granular stacking when the concrete material is placed in the mould. Considering that the porosity between the aggregates (intergranular macroporosity) is linked to the granular stacking, the morphological parameters should have an influence on the concrete properties such as thermal and mechanical characteristics.

Measured physical properties are given in Table 3-5. The natural moisture content at ambient air is about 10% with a higher value for hemp hurd aggregates.

The results report a same bulk density for rice husks and hemp hurd aggregates but a different true density. The latter has been measured by Nguyen et al. [157], [158] for hemp

hurd aggregates by magnifying glass on a hemp stem. They reported a true density of 256 kg.m<sup>-3</sup>. For rice husks, Salas Serrano and Veras Castro [1] have used a more classical technique by instantaneous immersion in water and obtained 453 kg.m<sup>-3</sup> (Table 3-5). These published data are clearly conclusive. Compared to a hemp particle, a single rice husk has a true density which is almost 1.8 times higher. This is closely linked to the global geometrical structure of each kind of particle. Rice husks have a boat-like shape consisting of two interlocking halves. In fact, a single husk can be associated to a hollow semi-ellipsoid structure. This type of geometry presents an original aspect when compared to the parallelepipedic shape of a hemp particle, in particular as regards the macroporosity created in the concrete specimens.

**Table 3-5.** Physical characteristics of rice husks and hemp hurd aggregates

| Physical properties   | Rice husk   | Hemp hurd   |
|---|---|---|
| Equilibrium moisture content (%) <sup>*</sup>                               | 9.18 ± 0.62   | 11.66 ± 1.40  |
| Dry bulk density $\rho_B$ (kg.m <sup>-3</sup> )                             | 103.2 ± 5.4   | 103.5 ± 4   |
| True density of a particle $\rho_T$ (kg.m <sup>-3</sup> ) [1], [157], [158] | 453   | 256   |
| Absolute density $\rho_S$ (kg.m <sup>-3</sup> ) [130], [139], [157], [158]  | 780   | 1465  |
| Schematic view of a single particle   |  |  |

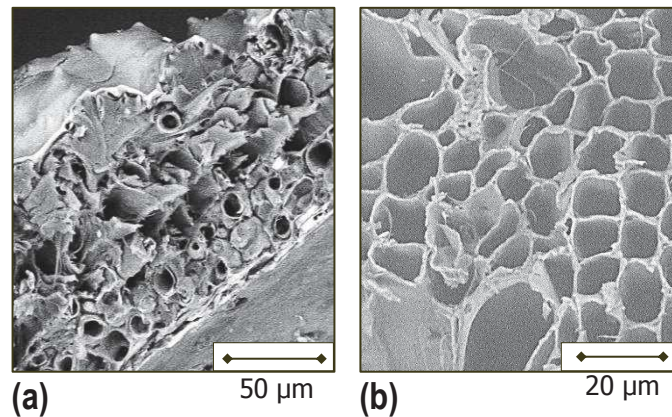
<sup>\*</sup>Plant aggregates were stored in a room at 20°C and 50%RH before drying at 105°C during 48 hours

The absolute density (solid phase) of the natural particles has been assessed using pycnometric methods by some authors. It has been evaluated at 1465 kg.m<sup>-3</sup> for hemp hurds [157], [158], a value which is very close to that of wood, equal to 1540 kg.m<sup>-3</sup> [164]. The absolute density is all the more representative to estimate the internal total porosity of hemp hurds that their porosity is essentially open and interconnected [107]. For rice husks, it is estimated at 690 kg.m<sup>-3</sup> by Salas Serrano and Veras Castro [1] that is to say about half of the hemp hurds one. The small difference between  $\rho_T$  and  $\rho_S$  for rice husks and on the contrary the very big difference for hemp hurds obviously shows a smaller rate of open porosity for rice husks. It should be noted that rice husks are characterized by a certain amount of close porosity [140], [141] in such a way that their total porosity is likely to be more important than the open one ( $\eta_o$ ) calculated in Table 3-6. Some researchers refer to an absolute density of 780 kg.m<sup>-3</sup> [130], [139] and a total porosity close to 50% [140].

**Table 3-6.** Estimation of the internal open porosity of a husk and a hemp particle

| Particle  | Open porosity (%)<br>$\eta_o = 1 - \frac{\rho_T}{\rho_S}$ |
|-----------|---|
| Rice husk | 34.3  |
| Hemp hurd | 82.5  |

The cross-sectional view of a single particle by scanning electronic microscopy (SEM) is reported in Figure 3-5. SEM pictures allow seeing the honeycombed structure of a hemp particle with a lot of vessels whose diameter is very high (more than 10  $\mu\text{m}$ ) (Figure 3-5b). The internal structure of a rice husk is different (Figure 3-5a). Some little vessels can be observed but the solid phase seems to be in a majority proportion.



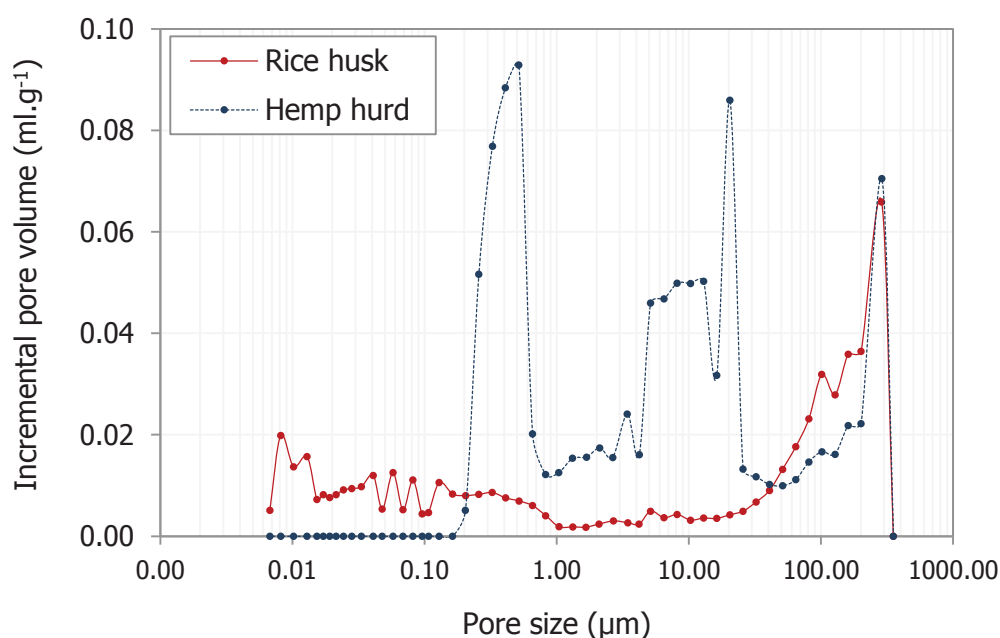
**Figure 3-5.** Cross-sectional SEM pictures of rice husk (a) and hemp hurd (b)

Based on the mercury porosimetry analysis, pore size distribution curves have been reported in Figure 3-6. This type of representation using the mercury incremental pore volume as a function of particles pore size shows the three levels of porosity in hemp hurd aggregates. This is due to the structural organisation of the xylem in which the conducting elements mainly consists of tracheid cells (from 5 to 50  $\mu\text{m}$ ) and vessels (from 50 to 300  $\mu\text{m}$ ). The punctuations which give the possibility for vessels to communicate can also create smaller pores.

Rice husks are characterized by very small pores under 0.1  $\mu\text{m}$ , which is not the case of hemp hurds. However, almost no pores are detected for rice husks from 1 to 30  $\mu\text{m}$ . The only common point between hemp hurds and rice husks is the presence of large vessels from 50 to 300  $\mu\text{m}$ . It is difficult to discuss about the influence of these results on the thermal properties obtained for the final concrete materials using rice husks or hemp hurds. It is known that the greater the amount of smaller pores, the lower the thermal conductivity. But

this is true if an equal volume fraction of pore spaces is compared. From literature results and from our investigations by SEM and MIP, it seems obvious that hemp hurds have a highly developed porous network in their thickness (about 1 mm) whereas a single husk is very thin (about 80  $\mu\text{m}$ ) with a total porosity significantly lower than that of a hemp particle.

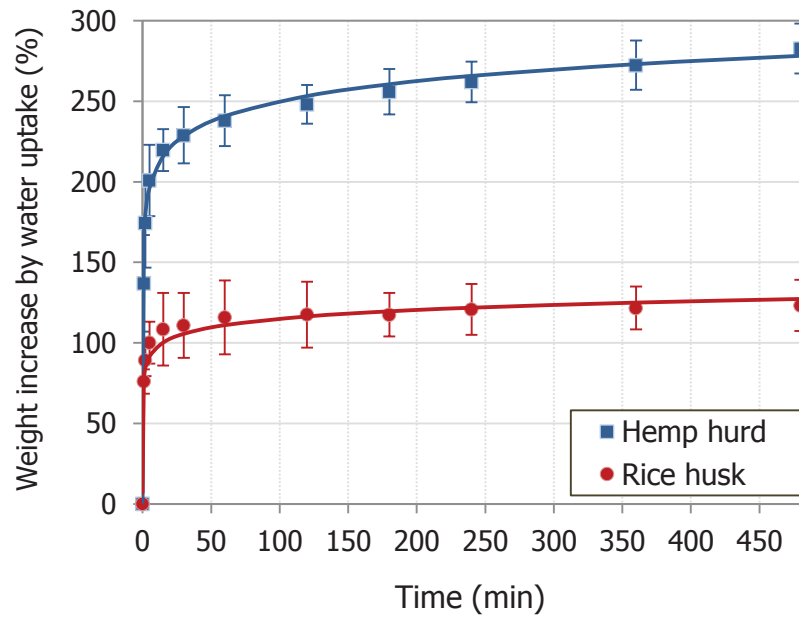
The structural features of rice husks have been investigated by some authors [137], [143]. They have to be kept in mind when using the whole husk for making composites. The association of the silicified outer epidermis cells ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{nH}_2\text{O}$ ) with the layers of lignified fibers is considered to provide an effective stiffness to husks [137]. This highlights the particular nature of rice husks which can be used as reinforcement fibers but also as aggregates according to their geometric shape.



**Figure 3-6.** Pore size distribution by mercury porosimetry

### III. 1. 2. Sensitivity of particles to water

The results of water absorption tests underline the fact that rice husks absorb less water than hemp hurds (Figure 3-7). After 8 hours of immersion in water, the weight increase of rice husk is about 120% whereas hemp hurd is able to absorb nearly 3 times its dry weight. Absorption kinetics is very fast during the first few minutes and after 5 minutes, a second stage takes place. During this stage, rice husks are quickly close to saturation when hemp hurds keep absorbing a higher amount of water. It has been shown that hemp hurd is able to absorb more than 4 times its dry weight after 24 hours of immersion before saturation [43].



**Figure 3-7.** Mass relative water absorption of rice husks compared to hemp hurd aggregates

### III. 1. 3. Chemical analysis

The chemical composition of hemp hurd and rice husk coming from some studies is presented in Table 3-7. As expected, rice husk is lower than hemp hurd in organic matter because of its silica ash content particularly high for a plant particle. It is almost interesting to note that the amount of hemicelluloses in rice husk is higher than that of hemp hurd but rice husk is lower in total carbohydrates (polysaccharides such as cellulose, hemicelluloses and extractives). The lignin content is the same in both cases.

**Table 3-7.** Chemical composition of hemp hurd and rice husk

| % dry basis          | Cellulose | Hemicelluloses | Lignin | Extractives | Silica ash |
|----------------------|-----------|----------------|--------|-------------|------------|
| Hemp hurd [43] [165] | 48        | 12             | 28     | 12          | -          |
| Rice husk [144]      | 25-35     | 18-21          | 26-31  | 2-5         | 15-25      |

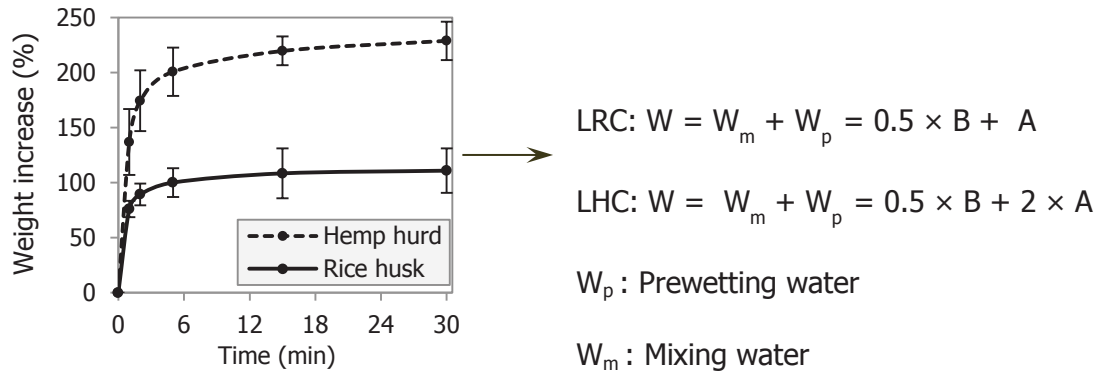
### III. 2. Design, weight monitoring and porosity of concrete specimens

#### III. 2. 1. Mix proportions

The amount of prewetting water was fixed on the basis of water absorption tests considering the water uptake after the first stage with a fast kinetics (Figure 3-8). It corresponds to the prewetting time of 5 minutes. Therefore, the water absorption coefficient



( $W_p/A$ ) was taken as 1 for rice husk and 2 for hemp hurd. The mixing water on binder mass ratio ( $W_m/B$ ) was taken as 0.5 and the final water on binder mass ratio ( $W/B$ ) can be calculated as indicated in Figure 3-8.



**Figure 3-8.** W/B mass ratio calculation using water absorption test results

Mix proportions and fresh densities of concrete specimens (LRC and LHC for each W/B) are reported in Table 3-8.

**Table 3-8.** Mix proportions

| Mixture | W/B  | Binder      | Aggregates | $W_p$ | $W_m$ | Fresh density |
|---------|------|-------------|------------|-------|-------|---------------|
|         |      | $kg.m^{-3}$ |            |       |       |               |
| LRC-1.5 | 1.17 | 280         | 190        | 190   | 140   | 800           |
| LRC-2   | 1    | 395         | 195        | 195   | 195   | 980           |
| LRC-2.5 | 0.9  | 490         | 195        | 195   | 245   | 1125          |
| LHC-1.5 | 1.83 | 200         | 135        | 270   | 100   | 705           |
| LHC-2   | 1.5  | 285         | 145        | 285   | 145   | 860           |
| LHC-2.5 | 1.3  | 390         | 155        | 310   | 200   | 1055          |

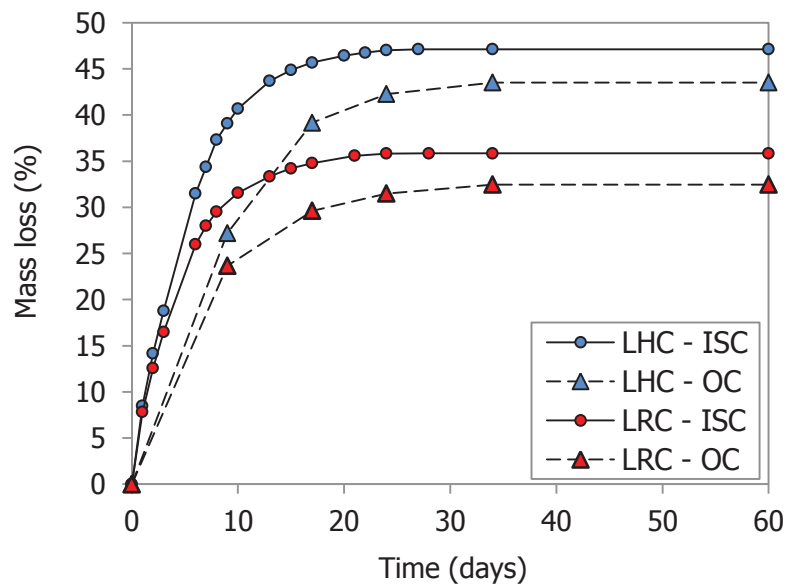
Because of the different physical properties of the two kinds of aggregates, it was difficult to reach a same density for LRC and LHC using a same B/A. This is mainly due to:

- The true density of a rice husk which is nearly twice as high as that of a hemp particle. This difference is critical since it results in a higher volume occupied by hemp hurds compared to that of rice husks for a same mass.
- The different behavior of aggregates towards water. As it has been shown by Nozahic et al. [43], hemp hurd aggregates are characterized by an important tangential swelling during water uptake, which certainly does not seem to be the case for rice husks.

For these reasons, the target density of LRC is necessarily higher than that of LHC for a same B/A mass ratio to achieve a sufficient mechanical strength.

### III. 2. 2. Weight monitoring during hydric stabilization

Mass losses from LHC-2 and LRC-2 wall mixtures kept at 20°C and 50%RH (indoor standard conditions: ISC) and exposed outdoors (outdoor exposure conditions: OC) are reported in Figure 3-9. Hydric stabilization is obtained for about 47% mass loss for LHC cured indoors whereas it is obtained for about 36% for LRC in same conditions. During the drying of the specimens, a large amount of water is evaporated. Some authors have found that about 90% of the initial total water introduced in the material is discharged during the hydric stabilization process [28], [43]. This is the case for LHC and LRC wall mixtures studied here if the mass loss is expressed in relation to the initial water content. From this, it appears logical to have a different total mass loss for LRC and LHC because of the different W/B, equal to 1 for LRC-2 and 1.5 for LHC-2.



**Figure 3-9.** Kinetic curves of hydric stabilization at 20°C – 50%RH (ISC) and for the outdoor exposure (OC)

With regard to the specimens cured outdoors, Figure 3-9 shows that they reach a lower stabilization level than specimens cured indoors. Concrete materials are in hydric equilibrium with an external ambiance which corresponds to an average temperature of  $7.8 \pm 3.4^{\circ}\text{C}$  during the 60 days period and a relative humidity overall higher than 50%.

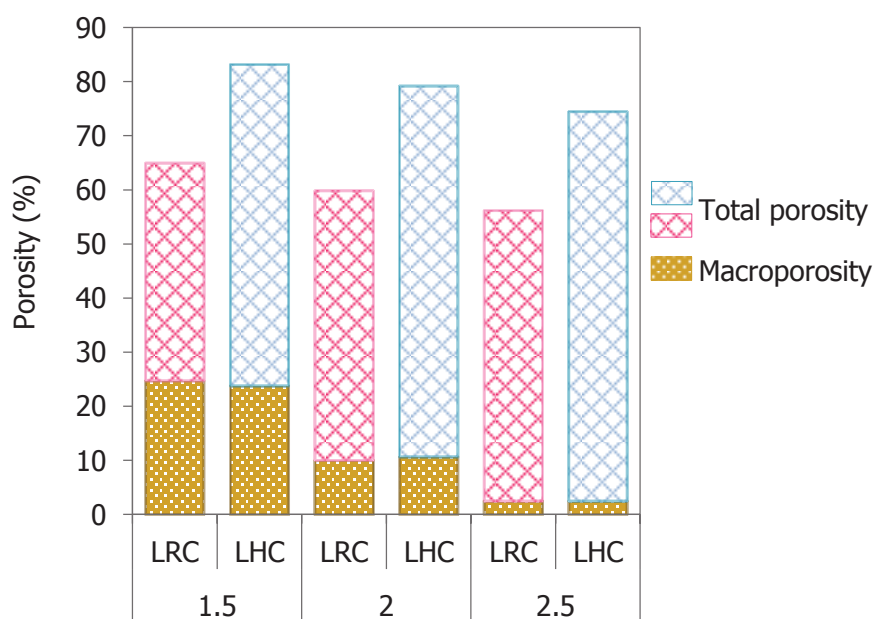
The average apparent density after 60 days for the different mixtures is given in Table 3-9. The density of LHC-2 (about  $460 \text{ kg.m}^{-3}$ ) corresponds to the usual density of LHC wall mixture intended for use as an insulating filling material in a wall timber frame recommended by the professional rules in hemp construction and studied in several research works [25], [26], [43]. Using the same mix proportions for LRC, a density of about  $640 \text{ kg.m}^{-3}$  has been reached after hydric stabilization at 20°C and 50%RH.

**Table 3-9.** Average apparent densities of LRC and LHC after 60 days of hardening

| Mixture | Apparent density (kg.m <sup>-3</sup> ) |                       |
|---------|--|-----------------------|
|         | 20°C – 50%RH (ISC)                     | Outdoor exposure (OC) |
| LRC-1.5 | 509 ± 6                                | -                     |
| LRC-2   | 637 ± 2                                | 669 ± 4               |
| LRC-2.5 | 734 ± 12                               | -                     |
| LHC-1.5 | 364 ± 5                                | -                     |
| LHC-2   | 459 ± 5                                | 494 ± 4               |
| LHC-2.5 | 600 ± 14                               | -                     |

### III. 2. 3. Porosity estimation of concrete mixtures

The intergranular porosity generated in concrete specimens, called macroporosity, and the total porosity including pores of hydrated lime and plant aggregates are reported in Figure 3-10.

**Figure 3-10.** Degree of porosity for the different mixtures (various B/A from 1.5 to 2.5)

From this estimation, it can be drawn that the B/A mass ratio has a great influence on the macroscopic porosity for both kinds of concretes. Macroporosity decreases with increasing B/A. Most importantly, the degree of macroporosity is almost identical for LHC and LRC with a same B/A mass ratio despite the fact that the density is not the same. This is due to the different true density of the natural particles as explained previously but also to the granular

stacking during compaction. Indeed, the monodisperse granulometric distribution of rice husks is likely to generate more intergranular spaces in the material.

However, the total porosity is in all cases higher for LHC mixtures. This is the result of the high degree of porosity within hemp aggregates (more than 80%) compared to that of rice husk (less than 50%).

Only little changes are noted concerning the total porosity as a function of the B/A mass ratio which has especially a significant effect on the macroporosity. For LRC mixtures, the total porosity ranges from 56% to 65% depending on the B/A mass ratio. As regards LHC, it ranges from 75% to 83%.

### III. 3. Thermal properties

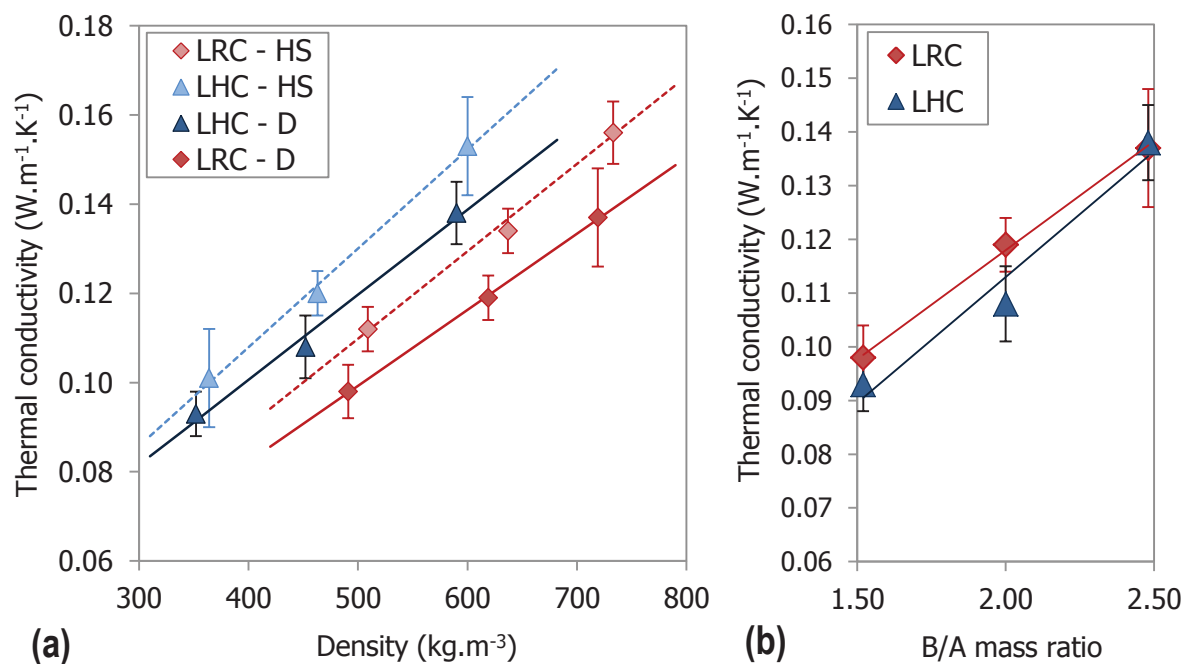
Thermal conductivity of LRC and LHC as a function of density (by varying the B/A mass ratio from 1.5 to 2.5) was measured after hydric stabilization (HS) at 20°C and 50%RH and in the dry state (D) (Figure 3-11). The results show linearity between thermal conductivity and density of the concrete materials, as it has been shown by some authors who have been interested in LHC thermal properties [26]. As expected, thermal conductivity decreased after drying the specimens at 60°C during two days in the oven. Given that this kind of porous material is very sensitive to relative humidity, in particular thermophysical properties, comparative analysis are often done after drying.

For a same density, it seems that LRC shows a lower thermal conductivity (Figure 3-11a). In fact, when comparing LRC with LHC for a same density, the B/A mass ratio is different. Moreover, it was found that the macroscopic porosity is strongly linked to the B/A mass ratio. As a consequence, it can be said that this millimetric porosity is one that truly have an impact on the thermal conductivity. Nevertheless, one must acknowledge that thermal conductivity of mixtures with a high B/A mass ratio remains quite good in view of the lower degree of macroporosity.

The thermal conductivity of LRC and LHC is compared from the B/A point of view in Figure 3-11b. It appears that both kinds of concretes present similar thermal performances even with a different level of total porosity. This is in agreement with the results obtained in Figure 3-11a. highlighting the influence of the millimetric porosity on thermal conductivity.

It could also be argued that the beneficial thermal properties of LRC are partly attributed to their boat-like shape which could leave several voids not filled by hydrated lime.

The dry thermal conductivity of LHC wall mixture (B/A = 2) is  $0.108 \pm 0.007 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . The value is similar to that obtained in many studies using hemp hurd and lime-based binders [26], [43], [157], [158]. The same mix proportioning gives a new wall mixture using rice husk with a thermal conductivity of  $0.119 \pm 0.005 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .



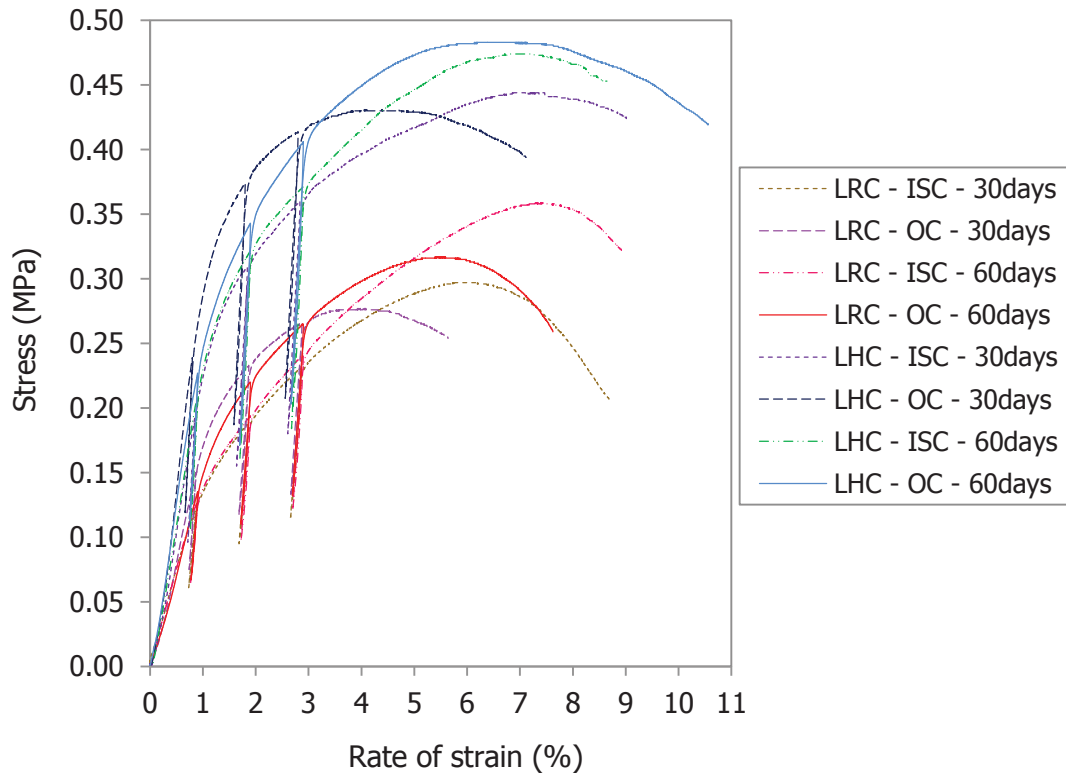
**Figure 3-11.** Thermal conductivity of LRC and LHC mixtures depending on the apparent density (a) and the B/A mass ratio (b) – HS: Hydric stabilization, D: Dry state

### III. 4. Mechanical properties

Compression tests were conducted on LRC-2 and LHC-2 mixtures in order to compare the mechanical characteristics of this mixture defined as a good compromise between thermal conductivity and compressive strength. The stress-strain curves obtained for specimens cured at 20°C and 50%RH (ISC) or exposed outdoors (OC) are given in Figure 3-12.

With respect to the global mechanical behavior, LRC and LHC are identical. The first part of the curves shows a linear quasi-elastic behavior where the initial elastic modulus can be determined. The material changes its behavior towards an elastoplastic one after 1% strain where the curve reaches a knee point. During this stage, the mineral binder and the interface between the plant aggregates and the binder are progressively damaged. The load is transferred to the aggregates. Under major deformations, the stress keeps going up without reaching complete failure because of the compaction ability of rice husks and hemp hurd aggregates due to their significant deformability. The peak stress, corresponding indeed to failure, is reached for unusual rates of strain in building materials.

The average compressive strength is  $0.33 \pm 0.03$  MPa for LRC and  $0.48 \pm 0.02$  MPa for LHC after 60 days, regardless of curing conditions (Figure 3-13a). This compressive strength is obtained for an average 6% strain. The results show that LRC presents a lower mechanical strength than that of LHC. Nevertheless, for 1% strain, the difference is not so big since the average stress for LRC is  $0.14 \pm 0.03$  MPa whereas it is  $0.20 \pm 0.04$  MPa for LHC.



**Figure 3-12.** Stress-strain curves for concrete specimens in compression

The determination of the elastic modulus on the initial slope is not very representative of the real elastoplastic behavior of this kind of material. For this reason, the modulus was also determined on loading/disloading cycles. It was noted that the modulus calculated on cycles for 1%, 2% and 3% strain exhibited comparable values. The average cycle modulus is reported in Figure 3-13b. It is firstly reported a higher modulus on cycles (CM) than on the initial slope (IM). As for compressive strength, the elastic modulus is higher for LHC.

From these statements, the differences between LRC and LHC in terms of mechanical performances could be justified by:

- (a) The interface between the natural particles and the binder.
- (b) The quality of the lime-based binder resulting from the hardening process.

When analyzing stress-strain curves in Figure 3-12, it appears that the knee point occurs at a lower stress level for LRC. This means that the binder and its bond with rice husks could be of lesser quality.

(a) The interface between the natural particles and the binder should be influenced by the morphological characteristics of rice husks for which the bond is maybe only effective on their external convex surface. After 1% strain, the load is progressively transferred to the particles and the mechanical behavior is more and more governed by their compaction

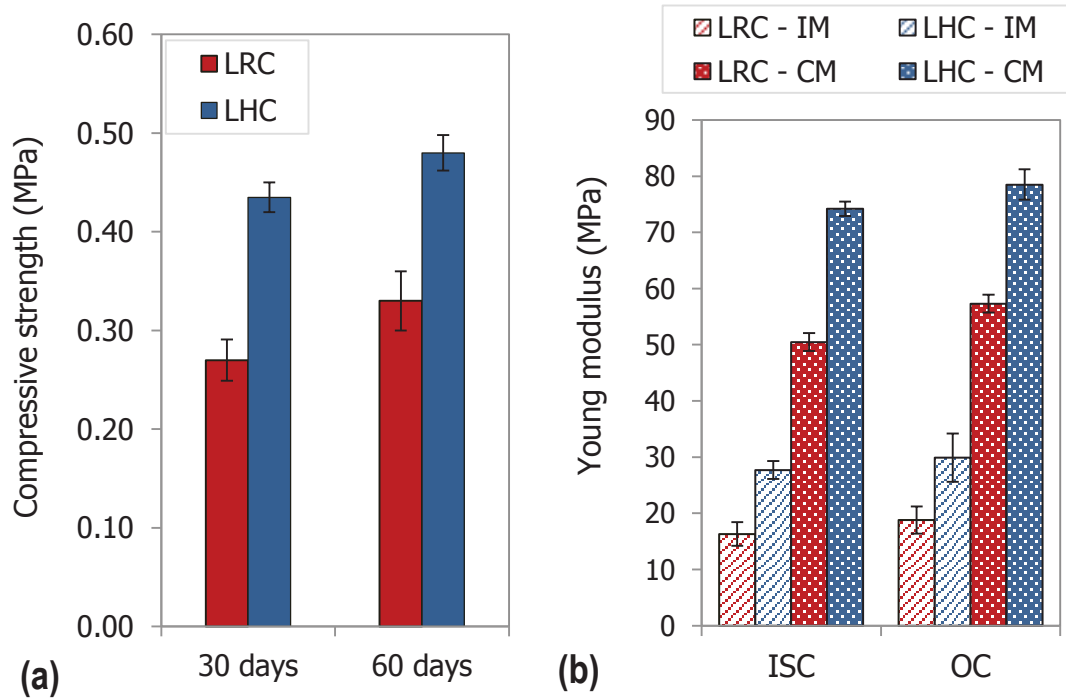
ability. Consequently, the stiffness properties of the plant particles, directly linked to their deformability, can influence the compressive strength of the concrete.

Because of their lower length on width ratio ( $L/W$ ), it appears that rice husks are oriented more randomly than hemp hurds after the compaction process. Some authors have shown that the compaction process of LHC with a low  $B/A$  mass ratio (no more than 2) generates an anisotropic layered composite with preferentially oriented particles in a perpendicular direction to the compaction axis [43], [157], [158], thereby favoring compressive strength. This can explain the lower mechanical properties of LRC for which rice husks are uncoupled from the binder for lower stress levels.

(b) Before 1% strain, the microstructure of the lime-based binder plays a significant role. The results suggest that the setting and the hardening of the lime-based binder could be better in LHC. As less water is used for the manufacture of LRC, one would have expected to obtain better mechanical performances, compared to LHC for which water absorption by hemp hurds is a huge problem. However, it is known that concretes based on plant aggregates suffer from chemical interactions between the mineral binder and the particle extracts which dissolve in the alkaline medium. Indeed, the dissolution of carbohydrate soluble polysaccharides such as sugar extractives or hemicelluloses has a disrupting effect on hydration reactions [120], [165], [166]. At early ages, the mechanical strength is mainly due to the hydration of  $C_2S$  compounds in hydraulic lime. The cumulative amount of extractives and hemicelluloses for rice husks and hemp hurd aggregates is approximately the same (Table 3-7). Despite this, the disrupting effect of rice husk components solubilized in the matrix is maybe more pronounced than that of hemp hurd extracts. Therefore, C–S–H phases could be less present in LRC.

The carbonation process gets an important place when using a lime-based binder with a great quantity of  $Ca(OH)_2$ . It begins significantly when excess water has been eliminated after one month (Figure 3-9). Carbonation of  $Ca(OH)_2$  is all the more important since the porosity of the concretes manufactured in this study is high and connected. The low and gradual carbonation is performed with a decreasing of the microporosity, this creating a progressive improvement of the mechanical strength up to several months. This explains the small increase of the compressive strength at 60 days compared to that obtained after 30 days of hardening (Figure 3-13a). The LRC-2 mixture is about  $640 \text{ kg.m}^{-3}$  with a lower rate of total porosity than LHC-2 which is  $460 \text{ kg.m}^{-3}$ . As a consequence, the carbonation rate in LRC could be lower than that of LHC. The initial total porosity of plant-based concretes using lime as eco-friendly binder has to be regarded as an advantage for the mechanical properties and even more for their evolution in the long run for  $CO_2$  penetration.



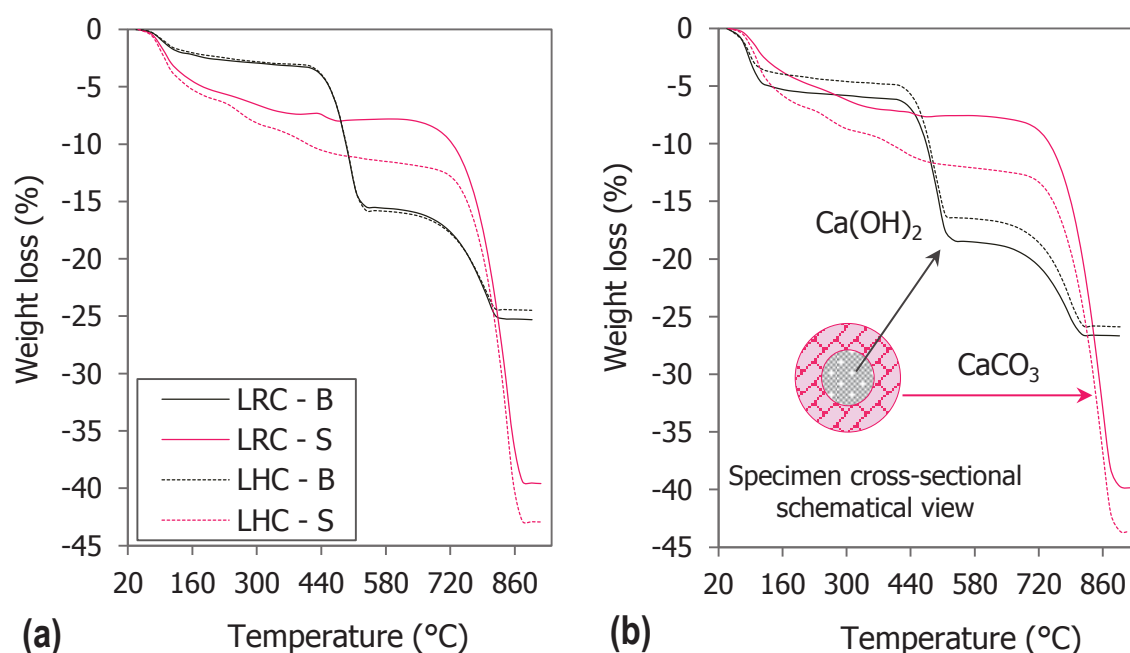


**Figure 3-13.** (a) Average compressive strength for 30 days and 60 days (b) Average elastic modulus depending on curing conditions of concrete specimens

Concerning the influence of curing conditions (indoors/outdoors) in this short-term study (60 days), compressive strength is not really impacted by the outdoor exposure. However, elastic moduli (both IM and CM) show an average 13% increase for LRC and 6% increase for LHC when specimens are exposed outdoors (Figure 3-13b) in accordance with climate conditions stated in Figure 3-2. The stiffness of the material can be influenced by the degree of carbonation from the surface to the bulk and the latter is dependent on relative humidity and temperature. According to several works, carbonation is faster at a relative humidity of 50-70% [70]. During the time exposure, relative humidity ranged from 40% to 90% in a cyclical way and days with values between 50% and 70% of relative humidity were in a majority. The influence of temperature is less known but tests have shown that more calcite is formed if cold carbonic acid is used for carbonation, in the range 0-10°C [167]. As the average temperature was  $7.8 \pm 3.4^{\circ}\text{C}$ , this can be also responsible for the slightly improvement of the concrete stiffness.

### III. 5. Matrix analysis by means of TGA

TGA curves of powdered matrix samples collected in the bulk (B) or on the surface (S) of concrete specimens are given in Figure 3-14.



**Figure 3-14.** TG curves of samples collected in the bulk (B) or on the surface (S) of concrete specimens tested in compressive strength after 30 days (a) ISC (b) OC

Similar results are obtained for binding matrix samples collected in the bulk of LRC and LHC, whether in climate-controlled conditions or outdoor exposure conditions.

Chemically unbound water is easily identified with a first weight loss before 100°C and it is slightly higher for bulk samples collected in specimens exposed outdoors. This is due to the higher amount of free water since the hydric equilibrium is not the same for the two different environments.

From 400°C to 500°C,  $\text{Ca(OH)}_2$  dehydroxylation occurs, illustrating a low carbonation within concrete specimens. There is no noticeable difference between LRC-B and LHC-B.

Matrix samples collected on the surface show a substantial increase of  $\text{CaCO}_3$  for which the thermal decomposition occurs between 600 and 900°C. Calcium hydroxide is almost fully consumed. As it has been represented in Figure 3-14b, carbonation is a long-term reaction which takes many months since  $\text{CO}_2$  has to penetrate into the core of the specimens. After 30 days of setting, specimens have a rigid skin mostly composed of hardened lime. Nevertheless, at early ages, the core remains relatively powdered.

In the range 100-400°C, a continuous weight loss is observed for samples collected in the rigid skin. This is attributed to the dehydration of hydraulic compounds such as C-S-H. From this, it seems that hydration is strongly affected in the core of the material but much less on exposed surfaces and this regardless of curing conditions.

TGA investigations performed in this study do not support the conclusion that LHC is more carbonated than LRC because carbonation follows a gradient from the surface to the core of the specimens and the carbonation depth is not known.

## IV. Conclusion

A new eco-friendly building material has been developed by using local rice husk as plant aggregate and a lime-based binder. Contrary to what was done previously with rice husk, this crop residue has been valorized without any burning or grinding. Moreover, using rice husk in a lightweight insulating material like hemp concrete one is totally innovative.

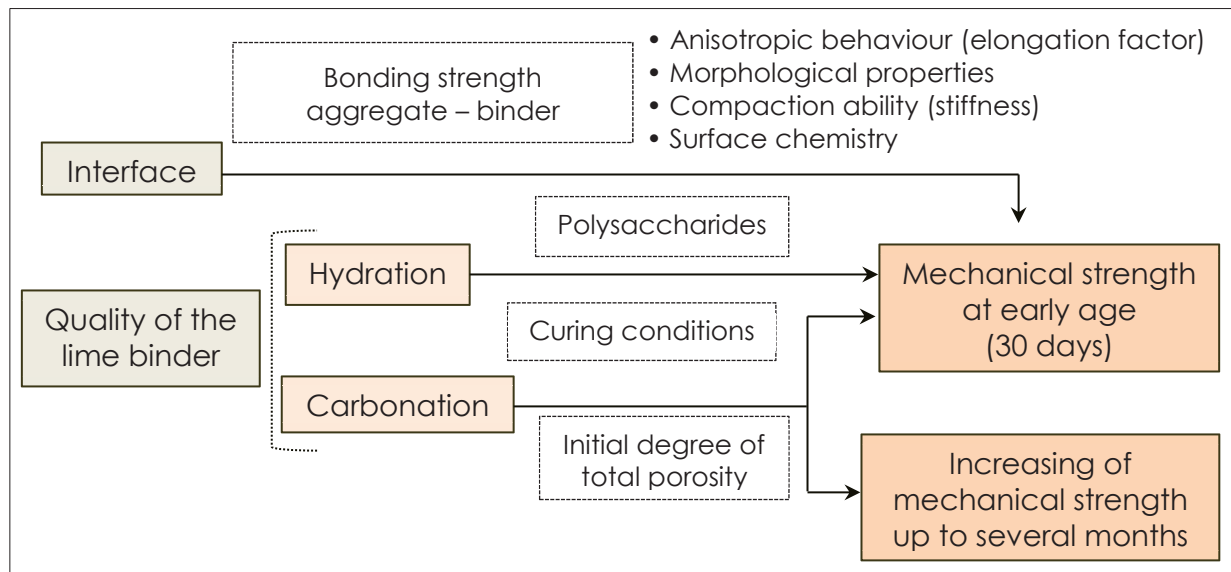
With the purpose to compare this new composite material based on rice husk with hemp concrete, the investigations have also been led on hemp concrete from the characterization of plant aggregates to the final properties of concrete materials.

The characterization of the natural particles has shown completely different features for rice husk and hemp hurd. The higher true density and the different behavior of rice husk towards water involved changes in the concrete designing. Rice husk concrete mixtures have been manufactured with higher densities than those of hemp concrete while remaining well below  $800 \text{ kg.m}^{-3}$ .

Despite the fact that rice husks are less porous than hemp hurds, rice husk concrete has shown good thermal properties. The study highlighted the strong link between the thermal conductivity and the millimetric porosity generated in concrete materials manufactured with a low B/A mass ratio.

The mechanical strength of the concrete specimens was studied on a mixture intended for use as an insulating filling material in a wall timber frame. It is defined with a binder on aggregates mass ratio of 2 for hemp concrete. The compressive strength of the developed rice husk concrete with this mixture was  $0.33 \pm 0.03 \text{ MPa}$  after 60 days of setting whereas it was  $0.48 \pm 0.02 \text{ MPa}$  for hemp concrete. The mechanical behavior after 2 months was not significantly affected by the outdoor exposure in accordance to temperature and humidity variations which occurred during the study.

There is potential in the association of raw rice husks with a lime-based binder for eco-builders. As the carbonation process plays a key role in these plant-based concretes, further works are underway to monitor the mechanical strength in a longer term. By comparing the evolution of the mechanical characteristics of LRC and LHC with time, it will be possible to evaluate the influence of the carbonation process in relation to other parameters which may affect the mechanical strength of the plant-based concretes. In this respect, the research program is continued on how to improve the mechanical properties of this new material based on rice husks by intervening on lime carbonation but also on the chemical interactions between natural particles and lime (Figure 3-15).



**Figure 3-15.** Schematic representation of parameters influencing the mechanical strength of LRC and LHC studied in this work

## Acknowledgements

The authors are grateful to Christian Buisson and Marc Longerey for their help in the experimental work.

## Bilan du Chapitre

Ce premier chapitre a permis de mettre en lumière les distinctions importantes entre la chènevotte et la balle de riz. La très grande majorité des particules lignocellulosiques ayant fait l'objet de travaux de recherche à propos de leur association avec une matrice minérale provient de la tige des végétaux. C'est notamment le cas du granulat de chènevotte qui correspond à un assemblage assez hétérogène de particules parallélépipédiques de bois hétéroxylé. Ce dernier est effectivement obtenu suite à une opération de broyage de la tige du chanvre. Il respecte les exigences du label « chanvre bâtiment » donnant notamment la granulométrie à adopter. La balle de riz, qui correspond à l'enveloppe protectrice du grain de riz, est utilisée directement après le décorticage (sans broyage). Le granulat se présente sous la forme de demi-coques de faible épaisseur et de dimensions très proches. La nature différente des granulats (origine, structure, morphologie) se traduit alors dans un premier temps par une distribution granulométrique dont la dispersion est nettement plus resserrée pour la balle de riz (Tableau 3-10). D'autre part, si la masse volumique en vrac des deux types de granulats est identique, il n'en est rien pour la masse volumique apparente d'une particule qui est quasiment 2 fois plus élevée pour la balle de riz. Ces différences ont

tendance à favoriser la macroporosité inter-granulaire au sein du béton à base de balles de riz. Par ailleurs, la chènevotte comporte de nombreux vaisseaux responsables d'une porosité ouverte particulièrement élevée. Il s'en suit une forte capacité d'absorption d'eau. La balle de riz, quant à elle, est caractérisée par une porosité intra-granulaire nettement moins développée et un coefficient d'absorption d'eau plus faible (Tableau 3-10).

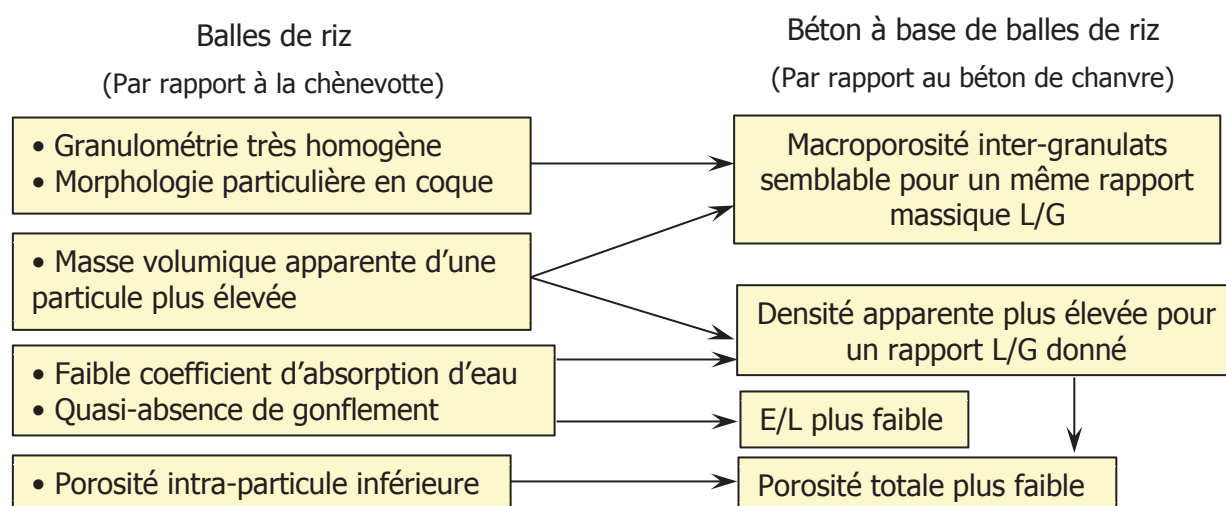
**Tableau 3-10.** Récapitulatif des principales caractéristiques des granulats

| Granulat     | $\Phi_{5-90} - \Phi_{5-10}^a$ | Masse volumique en vrac ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) | Masse volumique apparente d'une particule ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) | Porosité ouverte (%) | $W_{\text{abs}}$ 5 min (%) <sup>b</sup> |
|--------------|-------------------------------|--|--|----------------------|---|
| Chènevotte   | 6,75                          | $103,5 \pm 4$                                  | $\sim 260$   | $\sim 80$            | $201 \pm 22$                            |
| Balle de riz | 2,35                          | $103,2 \pm 5,4$                                | $\sim 450$   | 35-50                | $100 \pm 13$                            |

<sup>a</sup> Intervalle inter-décile représentatif de la dispersion de la distribution granulométrique (Figure 3-4b)

<sup>b</sup> Pourcentage d'absorption d'eau du granulat sec après 5 minutes d'immersion

La quantité d'eau totale à incorporer dans le mélange a été calculée en ajoutant l'eau de gâchage à l'eau de prémouillage du granulat. Cette dernière est calculée à partir du taux d'absorption d'eau des granulats après 5 minutes d'immersion. La rapport  $E/L^7$  se retrouve donc réduit pour le béton à base de balles de riz. Par ailleurs, le comportement différent de la balle de riz vis-à-vis de l'absorption d'eau ainsi que sa masse volumique apparente plus élevée impliquent une densité à l'état frais plus importante en comparaison du béton de chanvre pour un rapport  $L/G^8$  donné. Les liens entre les caractéristiques de la balle de riz et celles du béton sont résumés dans la Figure 3-16.



**Figure 3-16.** Influence des caractéristiques de la balle de riz sur la formulation et les propriétés du béton

<sup>7</sup> Rapport massique Eau/Liant ( $E/L$ )

<sup>8</sup> Rapport massique Liant/Granulat ( $L/G$ )

Ce chapitre a aussi montré que la conductivité thermique du béton à base de balles de riz est proche de celle du béton à base de chènevotte pour un rapport L/G donné (Tableau 3-11). La macroporosité inter-granulats semble jouer un rôle particulièrement important sur le pouvoir isolant de ce type de formulation à fort dosage volumique en granulats.

Les performances mécaniques en compression obtenues pour le béton à base de balles de riz se sont toutefois montrées inférieures à celle du béton de chanvre malgré une densité apparente plus élevée (Tableau 3-11). Elles restent satisfaisantes du point de vue des règles professionnelles de la construction en chanvre qui exigent une résistance à la compression supérieure à 0,2 MPa et un module d'élasticité supérieur à 15 MPa après 60 jours de cure en conditions standards (20°C – 50%HR)[103].

Toutefois, il serait intéressant d'améliorer la résistance mécanique en compression des agrobétons, notamment pour l'élaboration potentielle d'éléments préfabriqués (manutention, éléments semi-porteurs en construction individuelle, etc.). Plusieurs hypothèses ont été avancées pour justifier les performances mécaniques plus faibles du béton à base de balles de riz. On tentera ainsi dans la suite du travail d'apporter des éléments scientifiques pour en étudier certaines. Il s'agira de poursuivre le suivi des performances mécaniques dans le temps et de caractériser le durcissement du liant puisque celui-ci peut être impacté par la présence des granulats végétaux (Figure 3-15). Cela permettra également d'avoir une première approche sur le vieillissement du matériau en conditions naturelles. Parallèlement, on cherchera à évaluer l'effet de diverses conditions de cure dans l'objectif d'accélérer le développement des résistances mécaniques à court terme.

**Tableau 3-11.** Densité, conductivité thermique et résistance à la compression de la formulation L/G = 2

| « MUR » L/G = 2    | Densité après stabilisation hydrique à 20°C – 50%HR (kg.m <sup>-3</sup> ) | Conductivité thermique $\lambda^*$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ) | Résistance en compression à 60 jours $R_{C-60j}$ (MPa) |
|--------------------|---|--|--|
| Chaux/Chanvre      | 459 ± 5   | 0,108 ± 0,007  | 0,48 ± 0,02  |
| Chaux/Balle de riz | 637 ± 2   | 0,119 ± 0,005  | 0,33 ± 0,03  |

\*Mesurée sèche

# Chapitre 4

## **Suivi des performances mécaniques et du durcissement à long terme suivant le mode de conservation et effet d'une cure en carbonatation accélérée**

### **Préambule**

Les résultats obtenus dans le chapitre précédent (n°3) ont montré que les caractéristiques mécaniques des agrobétons à base de chaux après 1 mois de cure sont faibles. Ils sont conformes à la littérature en ce qui concerne le béton de chanvre et sont au-delà du seuil minimal recommandé par les règles professionnelles de la construction en chanvre pour les deux types de matériaux incorporant la chènevotte ou la balle de riz. Le béton à base de balles de riz s'est avéré toutefois moins résistant en compression dès les premiers essais après 30 jours de durcissement à 20°C et 50%HR.

Pour ce type de béton composite associant une matrice minérale à base de chaux avec un granulat végétal, on considère que les performances mécaniques dépendent à la fois de la qualité du durcissement du liant et de la liaison mécanique pâte-granulat. Les performances mécaniques plus faibles du béton à base de balles de riz pourraient donc être expliquées par l'un de ces deux facteurs ou l'association des deux. Ce second chapitre s'intéresse à la caractérisation du durcissement du liant par la carbonatation de la chaux hydratée et l'hydratation des phases silicatées de la chaux hydraulique ( $C_2S$ ). Il s'agira de suivre les performances mécaniques des deux bétons jusqu'à 10 mois de conservation pour une formulation donnée (dosage L/G = 2) afin de comparer les cinétiques de prise en résistance, représentatives de la maturation progressive du liant et d'en évaluer le durcissement



(carbonatation et hydratation). Cette étude permettra de comprendre si l'incorporation de la balle de riz perturbe davantage les mécanismes de durcissement du liant qui dépendent grandement des conditions de cure (humidité relative, température, taux de CO<sub>2</sub>) mais qui peuvent également être impactés par la lixiviation des polysaccharides (hydratation) ou le degré de porosité et la distribution des pores au sein du béton (carbonatation).

La cinétique de durcissement des agrobétons utilisant la chaux comme liant est très lente. Elle est en effet reliée à la cinétique de carbonatation aérienne par diffusion et dissolution du CO<sub>2</sub> dans l'eau des pores qui s'effectue progressivement au fil des mois. Le développement de la résistance mécanique des agrobétons chaux/chènevotte mis en place in-situ (i.e. par remplissage d'une structure porteuse en bois) est donc très long. Dans ce chapitre, nous évaluerons aussi l'effet d'une cure en carbonatation accélérée dans l'objectif d'augmenter la résistance en compression à court terme des agrobétons (1 – 2 mois). L'intérêt d'une telle étude se porte alors sur la préfabrication d'éléments à résistance en compression améliorée.

Les investigations menées dans ce chapitre font l'objet d'un deuxième article (B) publié dans « Construction and Building Materials » et concernent donc :

- (1) Le suivi des caractéristiques mécaniques en compression des agrobétons jusqu'à 10 mois de conservation naturelle à 20°C et 50%HR ou en exposition extérieure et la caractérisation du durcissement du liant à base de chaux à cœur et en surface des éprouvettes.
- (2) L'effet d'une cure des bétons dans une enceinte à forte concentration en CO<sub>2</sub> durant 1 mois sur le durcissement et la résistance en compression à court terme.

## Article B

(Published 6 July 2015 in Construction and Building Materials)

### Studying the hardening and mechanical performances of rice husk and hemp-based building materials cured under natural and accelerated carbonation

Morgan Chabannes, Eric Garcia-Diaz, Laurent Clerc\*, Jean-Charles Bénézet

C2MA, Ecole des Mines d'Alès, 6 Avenue de Clavières, 30319 Alès Cedex, France

\*corresponding author: Laurent.Clerc@mines-ales.fr

#### ABSTRACT

The purpose of this paper is to investigate the mechanical properties and the lime-based binder hardening of green concretes made of rice husk or hemp hurd. Concrete specimens were subjected to different curing conditions. Under natural carbonation, specimens were cured during 10 months either in a climate-controlled room (20°C – 50%RH) or exposed outdoors. The work also focused on an accelerated carbonation curing (CO<sub>2</sub> curing) aiming to improve the short term compressive strength (1 – 2 months) of the concrete materials.

Compressive strength tests were conducted at different dates until 10 months of natural carbonation and after CO<sub>2</sub> curing. Powdered matrix samples were collected in the bulk and on the surface of the specimens to investigate carbonation and hydration of the binder by thermal analysis and a phenolphthalein test was used to provide information about the carbonation depth.

Under natural carbonation, the results indicated that the lime-based binder was almost hardened in the same way for both concretes with a similar rate of carbonation. However, the rice husk concrete was characterized by a ceiling effect of mechanical performances over time, which was attributed to the lower bonding strength between rice husks and lime. Concerning specimens exposed outdoors, the strength gain over time was more significant owing to more favorable humidity conditions for carbonation. The accelerated carbonation curing led to an increase of mechanical properties of the concretes in the short term. The compressive strength after CO<sub>2</sub> curing was approximately equivalent to that obtained after 10 months of outdoor exposure under natural carbonation.

## Keywords

Rice husk, Hemp hurd, Curing conditions, Accelerated carbonation, Compressive strength, Lime binder hardening

## I. Introduction

Buildings are the largest consumers of energy worldwide and sustainable development has become a serious concern in this sector. The major challenge is to reduce the energy consumption linked to heating and cooling throughout the life of the building system. At the same time, the need to select raw materials with lower embodied energy is growing. The development of eco-friendly concrete materials using plant aggregates has increased significantly for the last 15 years. In this field, Lime and Hemp Concrete (LHC) is an example worth following. It is a carbon negative building material [159] with attractive hygrothermal properties [45]. The combination of water, hemp hurd aggregates and a lime-based binder produces a building material with an excellent thermal and sound insulation. LHC buffers temperature and humidity, prevents condensation and allows buildings to breathe. Moreover, it is a natural and solvent-free material that provides a comfortable healthy environment and a good air quality [30], [32].

The diversification of renewable and easily available lignocellulosic resources helps to popularize bio-based concretes. This work follows our previous research about the use of whole rice husk as plant aggregate to develop an insulating lightweight concrete like LHC for building envelopes [168]. The recovery of this crop residue without any burning or grinding to design such a material was almost unexplored.

Mechanical performances obtained after 2 months of setting showed that our rice-husk-based material was suitable for infilling walls. However, it cannot be used as a load bearing material because of its compressive strength being only slightly over 0.30 MPa at early ages [168]. Since the mechanical strength of this kind of building material is very low, some authors especially focused on the improvement of LHC compressive strength. The main parameters influencing the mechanical properties of bio-based building materials like LHC are binder type and binder content, intrinsic characteristics of aggregates and their bonding strength with the binder, curing conditions, age of concrete and process used for concrete manufacturing [25], [37], [44], [157], [158].

The works of Nguyen [157], [158] highlighted a significant increase of compressive strength when specimens are placed with a high compaction load. However, this process can be detrimental to the hygrothermal properties.

Many authors have studied aggregate surface treatments in order to restrict the release of hydro soluble components and make aggregates hydrophobic, with the purpose to improve the cementitious matrix hydration and the interface. This method is fairly effective when Portland cement is used [1], [116], [125], [130]. However, when lignocellulosic concretes are designed with a lime-based binder, results are more controversial [19], [31], [44]. For instance, it has been reported a degradation of surface wettability which has yielded a negative impact on mechanical properties [44]. Moreover, the process is often heavy, costly and not very suitable for building industry.

The type of binder and the contribution of its hydraulicity to the final strength of LHC give diverging views. The presence of calcium silicate phases can contribute to early age reactivity and promote strength as long as hydration can be well performed. However, according to some authors, using a binder with a high hydraulicity like cement leads to an important powdering effect due to hydration disrupting [26], [43]. It also must be pointed that for lime-based binders, carbonation contributes towards strength as the concrete ages [37].

The materials studied in this work are made up of rice husk or hemp hurd with a lime-based binder (hydrated and hydraulic lime). Arnaud and Gourlay [25] have well reported the evolution of LHC compressive strength with time using a lime-pozzolan binder. The latter was increased from 0.35 MPa to 0.85 MPa between 21 days and 24 months of setting and was largely attributed to slow carbonation.

The main weakness of lignocellulosic concretes using lime as binder is the long time they require to cure when cast in-situ. Therefore, the improvement of mechanical performances of the lime binder at early ages is certainly a path that needs to be explored. For lime-based mortars designed for restoration works, slow carbonation times and low mechanical strength at early age are also inconveniences. Some studies focused on improving hardened properties of aerial lime-based mortars with adequate proportions of pozzolanic additives (such as metakaolin) and specific admixtures, especially water-retaining, water-reducing agents or even plasticizers [75], [77], [169], [170]. Pozzolans can improve durability and mechanical strength in medium-term [77]. The use of admixtures is rather tricky as the fresh state properties are also influenced and the dosage has to be precisely contained [75], [169], [170].

Another attractive possibility is to accelerate carbonation process of lime. This was investigated by the use of chemical additives in the works of Medici et al. [171], [172]. The presence of an amine-based resin that reacts very well with acid gas like CO<sub>2</sub> accelerated the carbonation of aerial lime-based mortars and pastes, thus enhancing their short-term compressive strength. Accelerated carbonation using a CO<sub>2</sub>-rich atmosphere is more widespread for all cementitious materials [69]–[72]. It has been studied on lime mortars and

pastes by some authors [68], [86] and compared to natural carbonation by Cultrone et al. [88]. In the latter work, 90 wt.% portlandite-calcite transformation was achieved in over one week by subjecting lime mortars to a CO<sub>2</sub>-rich atmosphere. Reaction mechanisms of lime carbonation are well described by Cizer [68]. It is a natural process whereby Ca(OH)<sub>2</sub> reacts with atmospheric CO<sub>2</sub> to form calcium carbonate CaCO<sub>3</sub> which is denser and stronger. Carbonation under ambient conditions is very slow, as a consequence of the relatively low concentration of CO<sub>2</sub> in the atmosphere (0.03-0.04%) [69]. Hence, the development of accelerated carbonation through exposure to high CO<sub>2</sub> concentrations for shorter periods of time. The extent and quality of carbonation depend upon several parameters. CO<sub>2</sub> reactivity is linked to the nature of binder phases and CO<sub>2</sub> diffusivity is linked to pore network and exposure conditions, in particular relative humidity [68], [69]. Using accelerated carbonation appears very promising with particularly porous lignocellulosic concretes designed with an important part of Ca(OH)<sub>2</sub>. Some studies have dealt with the effect of accelerated carbonation on vegetable fiber reinforced composites. They are presented as a good initiative to CO<sub>2</sub> sequestration and an interesting way to decrease alkalinity and porosity within concrete. A smaller average pore diameter associated with a densification of the matrix by higher precipitation of CaCO<sub>3</sub> results in increased bulk density, improved mechanical properties and interface and enhanced durability [173]–[175].

The first objective of the current paper is to monitor the mechanical strength of rice husk and hemp concretes until 10 months in two kinds of curing conditions as an extension of our previous study [168]. Mechanical performances are investigated for specimens cured in standard curing conditions (20°C – 50%RH) and compared with those of specimens cured outdoors. The evolution over time of the chemical nature of lime-based binder phases is characterized and discussed in order to better understand the way in which carbonation and hydration perform in this mixture of lime depending on curing conditions. Moreover, the purpose is also to follow and compare LHC with LRC (Lime and Rice husk Concrete) in terms of lime binder hardening in relation to other parameters which may affect the mechanical strength of the final concrete.

The second objective is to characterize specimens after accelerated carbonation in a CO<sub>2</sub> curing enclosure in a similar way to the characterization under natural carbonation. This is carried out in the prospect of moving towards a load-bearing material for single-storey houses using precast bricks as structural elements.

## II. Materials and methods

### II. 1. Raw materials

Two different crop residues were used to design bio-based building materials: as received whole rice husks coming from a nearby rice field (Biosud, France) and a commercial hemp hurd (FRD, France).

#### II. 1. 1. Lime binder

The binder used in this study was a 50/50 wt.% combination of natural hydraulic lime NHL3.5 from Lafarge and hydrated calcic lime CL90-S from Saint-Astier (EN 459-1 Standard). Hydrated lime is obtained by slaking of quicklime (CaO) derived from burning of limestone and is mostly composed of calcium hydroxide (Table 4-1). Hydraulic lime results from calcination of chalky siliceous limestone, thereby giving rise to reactive silicates. After slaking, hydraulic lime consists of  $\text{Ca(OH)}_2$  and belite  $\text{C}_2\text{S}$  (Table 4-1).

**Table 4-1.** Main mineralogical components of CL90-S and NHL3.5

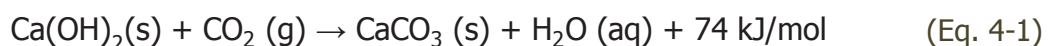
| wt. %       | % $\text{Ca(OH)}_2$ | % $\text{C}_2\text{S}$ | % Unburnt $\text{CaCO}_3$ |
|-------------|---------------------|------------------------|---------------------------|
| CL90-S      | 85                  | -                      | 10                        |
| NHL3.5      | 45                  | ~ 30                   | 10                        |
| 50/50 wt. % | 65                  | ~ 15                   | 10                        |

#### II. 1. 2. Reaction mechanisms

After an initial step of drying, carbonation proceeds from the surface into the pore system following different steps [68], [69], [173]:

- (i) Diffusion of gaseous  $\text{CO}_2$  through the open pores and its dissolution in alkaline pore water forming carbonic acid  $\text{H}_2\text{CO}_3$ ,
- (ii) Dissociation of carbonic acid as bicarbonate ( $\text{HCO}_3^-$ ) and carbonate ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) ions,
- (iii) Reaction between  $\text{Ca}^{2+}$  coming from the dissolution of  $\text{Ca(OH)}_2$  in the pore water and  $\text{CO}_3^{2-}$  ions forming  $\text{CaCO}_3$ .

The overall reaction of lime carbonation can be synthesized as follows (Eq. 4-1) [176]:



In addition, hydration reaction of  $C_2S$  also occurs. It is described as follows (Eq. 4-2) [45]:



## II. 2. Preparation and curing of concrete specimens

### II. 2. 1. Concrete design

Rice husk concretes (LRC) and Hemp concretes (LHC) were manufactured by means of manual compaction process in cylindrical  $\Phi 11 \times 22 \text{ cm}^3$  moulds with a steel device.

Mix proportions are reported in Table 4-2. Specimens were designed with a binder-to-aggregate mass ratio (B/A) of 2. The mixing water ( $W_m$ ) was taken in such a way that  $W_m/B = 0.5$  and the prewetting water ( $W_p$ ) was determined testing the water absorption of the aggregates [168]. The final water-to-binder mass ratio (W/B) was calculated as indicated in Table 4-2. Because of different true densities (rice husk is nearly twice as dense as hemp) and different behaviors of aggregates towards water, LRC target density was higher than that of LHC for a same B/A mass ratio [168] (Table 4-2). As a consequence, the binder content of LRC was higher (as the amount of aggregates).

**Table 4-2.** Dosages and bulk density of the mixes in the fresh state

| Concrete | B/A | W/B <sup>a</sup> | Binder             | Aggregates | $W_p$ | $W_m$ | Bulk density |
|----------|-----|------------------|--------------------|------------|-------|-------|--------------|
|          |     |                  | kg.m <sup>-3</sup> |            |       |       |              |
| LRC      | 2   | 1                | 395                | 195        | 195   | 195   | 980          |
| LHC      | 2   | 1.5              | 285                | 145        | 285   | 145   | 860          |

<sup>a</sup>W =  $W_p + W_m$

### II. 2. 2. Curing under natural conditions

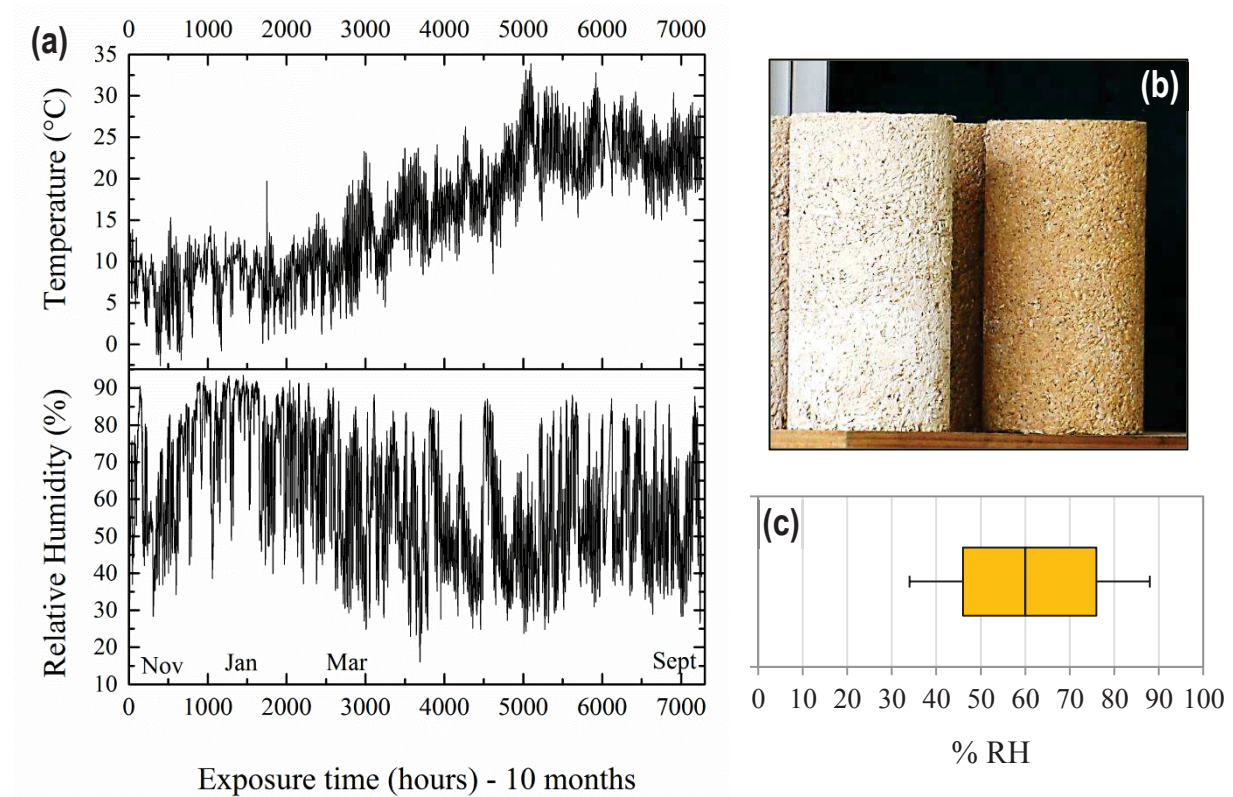
Specimens (Figure 4-1b) were demoulded after 24h and stored under 2 different curing conditions during 10 months:

- Indoor Standard Conditions (ISC) in a climate-controlled room at 20°C and 50%RH;
- Outdoor exposure Conditions (OC) under shelter with an acquisition system of temperature and RH (Almemo 2890-9 Measuring Instrument from Ahlborn).

The profile of temperature and relative humidity obtained outdoors is reported in Figure 4-1a. The first period of curing corresponds to winter with an average temperature of 10°C and a relative humidity which remained rather high. By going towards summer, temperature increased by up to 30°C. Important variations in relative humidity throughout the entire



period can be drawn from the profile. A more accurate analysis of the values is presented in the box plot in Figure 4-1c. It can be concluded that RH mostly ranged between 45% and 75% during the outdoor exposure curing.



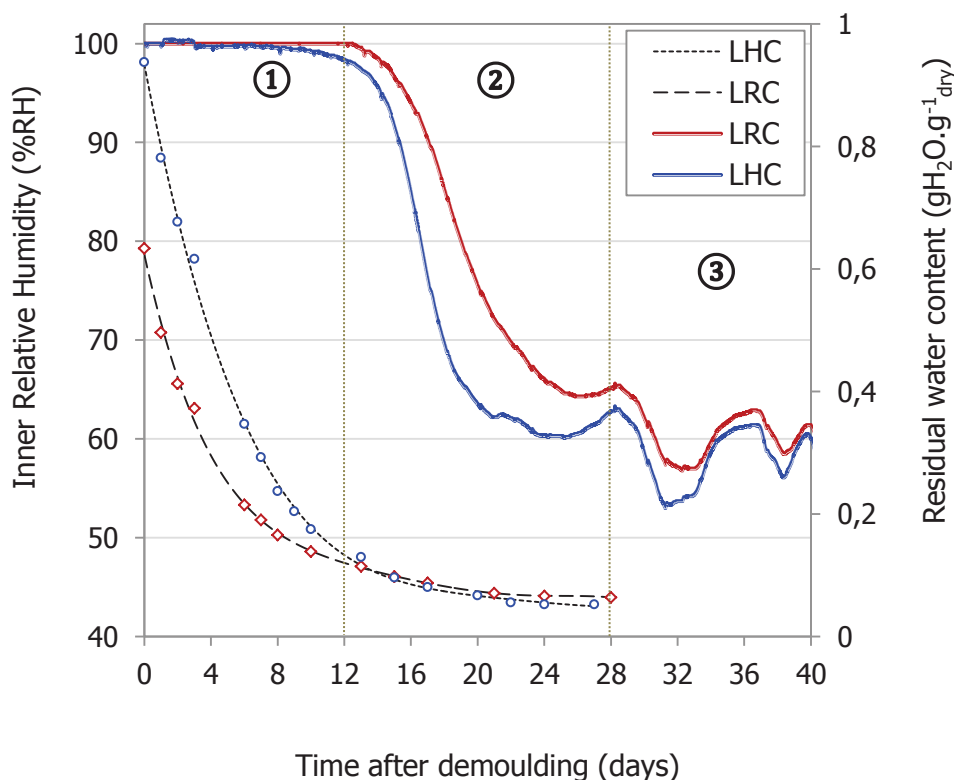
**Figure 4-1.** Data acquisition of temperature and relative humidity during 10 months of outdoor exposure (a) RH and temperature profiles (b) LRC-LHC specimens after demoulding (c) RH variations during outdoor exposure

### II. 2. 3. Initial conditioning before accelerated carbonation curing (ACC)

Diffusion of  $\text{CO}_2$  within concrete and chemical reaction kinetics are influenced by relative humidity in the environment and degree of saturation of pore spaces. The water content of the concrete just before the start of the carbonation process is an important factor as well as relative humidity in the gaseous mixture during the carbonation test. According to the French Standard XP P18-458, ordinary concretes are first cured under 100%RH during 28 days before being pre-conditioned in order to desaturate the pores on the surface and facilitate  $\text{CO}_2$  diffusion. For this to happen, an oven-drying at 40°C during 14 days is regularly used [84], [177]. Plant-based concretes cannot be cured under moist conditions during 1 month since the objective of the study is to compare ACC with standard conditions. In addition, Arnaud and Gourlay have shown that moist curing (>75%RH) negatively affects compressive strength of hemp concretes [25]. Therefore, in the present study, it was decided to store

specimens during 40 days in the climate-controlled room at 20°C and 50%RH before the beginning of CO<sub>2</sub> curing.

Relative humidity inside concrete specimens was measured during the initial curing using hygrometric probes placed in the core (Figure 4-2). The residual water content on a dry basis ( $\text{gH}_2\text{O.g}^{-1}_{\text{dry}}$ ) is also reported in Figure 4-2. The dewatering of the specimens evolves in 3 steps and has been well described by Colinart [178]. First, the drying rate is almost constant and corresponds to a funicular state for which free water forms a continuous liquid phase and can be transported to the surface and evaporated. The moisture content in the core of the specimens remains high (more than 95%RH) during this period (Stage 1 in Figure 4-2). After a few days, the drying front moves from the surface towards the interior of the specimens and the drying rate controlled by the internal moisture transfer decreases sharply. This results in a decrease of relative humidity in the core of the specimens, which is slightly more pronounced for LHC (2). This is probably due to different topologies of the porous system, which have a strong impact on the duration of this second stage. The period between 30 and 40 days corresponds to the hygroscopic equilibrium of the materials (3). At the end, RH weaves around  $60 \pm 5 \%$  which is approximately that measured in the room during this time. This rate was considered as well suited for the beginning of ACC.



**Figure 4-2.** Variation of relative humidity and residual water content in specimens during the initial conditioning

The pre-conditioning period of 40 days in standard conditions was considered largely enough to start the CO<sub>2</sub> curing in the carbonation chamber and the oven-drying was not useful given the high porosity of plant-based concretes. If the water saturation degree is too low after drying, carbonation may have trouble to start. Moreover, during the pre-conditioning period, C<sub>2</sub>S hydration can perform in the same conditions than those of standard curing.

## II. 2. 4. Accelerated carbonation in a CO<sub>2</sub> curing enclosure

After 40 days, LRC/LHC specimens were introduced in two different glass enclosures fed by CO<sub>2</sub> during one month (Figure 4-3). RH in the enclosure was fixed at 65 ± 5 % with a saturated salt solution of ammonium nitrate (NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>) which is considered as the optimal %RH to favor carbonation [84]. The CO<sub>2</sub> curing system was placed in the room at 20 ± 2 °C. CO<sub>2</sub> feeding was not continuous but the gas was injected regularly at given intervals of time with the regulator on the CO<sub>2</sub> tank. The CO<sub>2</sub> curing process was conducted in the following manner:

- A partial vacuum was created in the enclosure with a vacuum pump in order to reach an absolute pressure  $P_{\text{vacuum}} = 0.50 \pm 0.05$  bar.
- CO<sub>2</sub> was injected until the absolute pressure reached atmospheric one (about 1 bar).

This ensures to have an enclosure with [CO<sub>2</sub>] = 50% v/v just after CO<sub>2</sub> injection in standard temperature conditions and atmospheric pressure. At given intervals of time defined by the feedback, the pressure read on the manometer between the tank and the glass enclosure allows the assessment of CO<sub>2</sub> consumption. If the pressure is 0.50 bar, this means that CO<sub>2</sub> has been entirely consumed by the carbonation reaction and a new CO<sub>2</sub> feeding is required.

Both enclosures (LRC and LHC) were refilled 42 times by CO<sub>2</sub> and the mass of CO<sub>2</sub> consumed in the enclosure (mCO<sub>2</sub>) was calculated after each refilling as follows (Eq. 4-3):

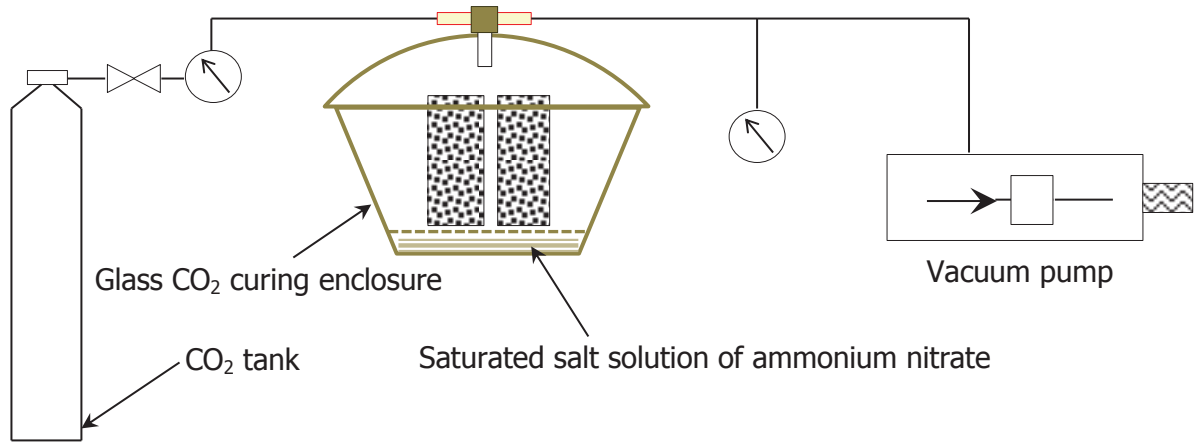
$$m\text{CO}_2 = M_W (\text{CO}_2) \times \frac{\% \text{vol} \times V_{\text{acc}}}{V_m} \quad (\text{Eq. 4-3})$$

$M_W (\text{CO}_2)$ : molar mass of CO<sub>2</sub>;

%vol: volume fraction of CO<sub>2</sub> consumed after each refilling;

$V_{\text{acc}}$ : theoretical accessible volume in the enclosure taking into account the total porosity of the concretes (60% for LRC and 80% for LHC [168]);

$V_m = 24 \text{ L.mol}^{-1}$ : molar volume in standard conditions of temperature and pressure.



**Figure 4-3.** Illustration of the CO<sub>2</sub> curing system of concrete specimens

The degree of progress in the carbonation process was evaluated considering that the full potential of CO<sub>2</sub> consumption is equivalent to the quantity of Ca(OH)<sub>2</sub> present in the binder (with molar ratio). Carbonation of C-S-H is regarded as negligible in a lime binder contrary to cement-based systems [179]. From mineralogical compositions of lime binders presented in Table 4-1, it can be seen that the mixture of CL90-S and NHL3.5 (at 50/50 wt.%) contains about 65% of Ca(OH)<sub>2</sub>.

The rate of carbonation was estimated measuring the weight gain during ACC. Indeed, carbonation results in an increase of mass as molar mass of CaCO<sub>3</sub> is 35.1% higher than Ca(OH)<sub>2</sub>. This method may cause errors associated with the production of water during carbonation as 1 mol of H<sub>2</sub>O is released for each mol of CO<sub>2</sub> consumed by lime. In this study, it has been decided to store specimens 8 additional days after ACC in the room at 20°C and 50%RH. Specimens were weighed after hydric stabilization and the weight was compared with that just before ACC after 40 days of pre-conditioning in the same environment to overcome the problem of released water. The weight gain of specimens in relation to the Ca(OH)<sub>2</sub> content was thus calculated according to the following equation (Eq. 4-4):

$$W_G / \text{Ca(OH)}_2(\%) = \frac{\Delta M}{m[\text{Ca(OH)}_2]} \times 100 \quad (\text{Eq. 4-4})$$

Where  $\Delta M$  is the weight gain of specimens after 30 days of ACC and 8 days at 20°C and 50%RH for hydric stabilization and  $m[\text{Ca(OH)}_2]$  is the mass of calcium hydroxide used for the concrete manufacturing.

The rate of carbonation (ROC) was defined as the conversion rate of Ca(OH)<sub>2</sub> into CaCO<sub>3</sub>. It was therefore calculated as follows (Eq. 4-5):

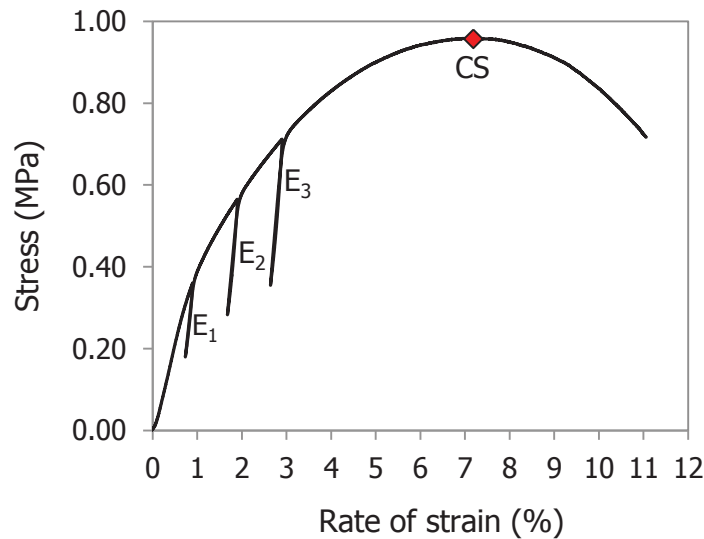
$$\text{ROC (\%)} = \frac{W_G / \text{Ca(OH)}_2 \text{ (\%)}}{35.1} \times 100 \quad (\text{Eq. 4-5})$$

## II. 3. Testing programs

### II. 3. 1. Compressive strength measurements

Mechanical properties in compression were investigated after 1 – 2 – 4 – 10 months of setting and hardening under natural conditions (ISC and OC) and after ACC (40 days of initial conditioning and 1 month of CO<sub>2</sub> curing). This was done with an electromechanical testing machine (MTS Criterion).

Displacement control tests were conducted with a loading rate of 5mm/min. Cycles of loading/disloading were applied for 1%, 2% and 3% strain. The disloading was performed until the stress reaches 50% of its initial value. A Typical stress-strain curve is reported in Figure 4-4. Compressive strength (CS) is defined as the maximum stress at failure and elastic moduli ( $E_1$ ,  $E_2$  and  $E_3$ ) are determined on the loading cycles (Figure 4-4).



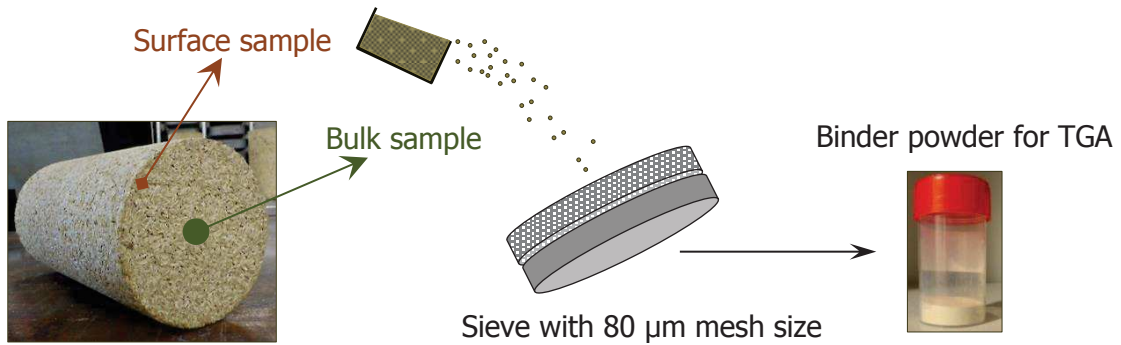
**Figure 4-4.** Characteristic stress-strain curve of a plant-based concrete specimen

### II. 3. 2. Carbonation depth by phenolphthalein spray

A color indicator solution was prepared mixing 1 wt.% of phenolphthalein powder in a solution composed of 70% ethanol and 30% distilled water. The solution was sprayed on the specimen section just after the compressive strength test. The phenolphthalein half-way stage occurs for a pH which is about 9. The region appears unstained when pH is under 9 whereas it is stained in pink when pH is beyond 9.

### II. 3. 3. Characterization and evolution of the binder hardening by TGA

After compressive strength tests at 1 – 4 – 10 months, powdered matrix samples were collected in the bulk of the specimens (LRC-B and LHC-B) and on the surface (LRC-S and LHC-S). These samples were sieved (80  $\mu\text{m}$  mesh size) before being analyzed by TGA (Thermogravimetric analyzer STA 409 Cell, Netzsch) (Figure 4-5). Thermal degradation was conducted from 25°C up to 950°C at 10°C.min<sup>-1</sup> under air atmosphere with about 150 mg samples.



**Figure 4-5.** Powder sampling and sieving for TGA

TGA was used to quantify the binder phases (hydration products, hydrated lime and  $\text{CaCO}_3$ ). This technique is more accurate to characterize partially carbonated regions which are not detectable by the phenolphthalein spray test. The weight loss occurring between 100°C and 400°C is considered to be due to the loss of water from C-S-H hydrates. The loss of water ( $\text{H}_2\text{O}$ ) between 400°C and 500°C corresponds to the dehydroxylation of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  and the amount of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  over time was determined according to Eq. 4-6.

$$\text{Ca}(\text{OH})_2(\%) = \text{LH}_2\text{O}(\%) \times \frac{M_w [\text{Ca}(\text{OH})_2]}{M_w (\text{H}_2\text{O})} \quad (\text{Eq. 4-6})$$

With  $M_w [\text{Ca}(\text{OH})_2]$  and  $M_w (\text{H}_2\text{O})$  the molar masses of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  and  $\text{H}_2\text{O}$ .

The amount of  $\text{CaCO}_3$  over time was calculated from the loss of carbon dioxide ( $\text{LCO}_2$ ) occurring between 600°C and 900°C according to the following equation (Eq. 4-7):

$$\text{CaCO}_3(\%) = \text{LCO}_2(\%) \times \frac{M_w (\text{CaCO}_3)}{M_w (\text{CO}_2)} \quad (\text{Eq. 4-7})$$

With  $M_w (\text{CaCO}_3)$  and  $M_w (\text{CO}_2)$  the molar masses of  $\text{CaCO}_3$  and  $\text{CO}_2$ .

The rate of carbonation by TGA at a given date was calculated according to the evolution of the  $\text{Ca(OH)}_2$  content as detailed in Eq. 4-8.

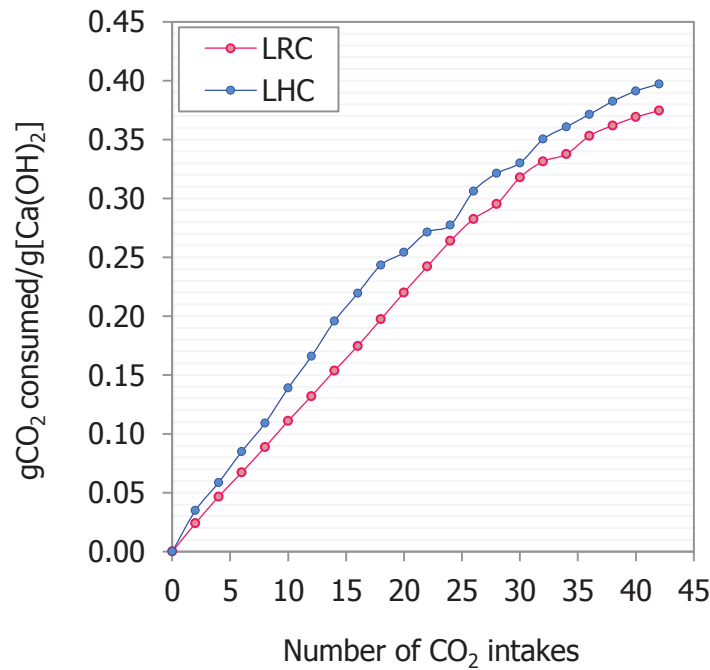
$$\text{ROC (\%)} = \frac{\%CH_{\text{In}} - \%CH_{\text{T}}}{\%CH_{\text{In}}} \quad (\text{Eq. 4-8})$$

Where  $\text{CH} = \text{Ca(OH)}_2$  and  $\%CH_{\text{In}}$  is the initial CH content of unhydrated lime and  $\%CH_{\text{T}}$  is the CH content at a given date.

### III. Results and discussion

#### III. 1. $\text{CO}_2$ consumption and weight gain during ACC

The mass of  $\text{CO}_2$  consumed in each enclosure up to 42  $\text{CO}_2$  intakes was estimated for each gas refilling. Given the fact that binder content is higher for LRC, the  $\text{CO}_2$  consumption has been normalized according to the amount of  $\text{Ca(OH)}_2$  in specimens and reported in Figure 4-6.



**Figure 4-6.**  $\text{CO}_2$  consumption in relation to the  $\text{Ca(OH)}_2$  content

The consumption kinetics started to decrease slightly after 20 intakes for both concretes. This slight decrease beyond a certain threshold can be explained by the significant amount of water released during carbonation, as confirmed by the apparition of condensation on the inside surface of the enclosure. The releasing water can hinder the diffusion of  $\text{CO}_2$  in pores if the water content exceeds the critical value of capillary condensation. This is driven by the



capillary network of transport and the drying rate. The reduction of the nanometric porosity in the lime matrix (i.e. its densification) due to the precipitation of  $\text{CaCO}_3$  in these pores can also create a barrier effect for the diffusion pathway of  $\text{CO}_2$  from the surface to the core. Considering the high level of macropores in concrete specimens, the barrier effect is more likely related to the enclosing of  $\text{Ca(OH)}_2$  particles by an impervious shell of calcite preventing complete carbonation [86].

Considering the mass of  $\text{CO}_2$  consumed at the end of the test and comparing it with the theoretical maximum consumption, it appears an approximate rate of carbonation of 65% in both cases (Table 4-3). Indeed, the rate of consumption is about  $0.4 \text{ gCO}_2/\text{g}[\text{Ca(OH)}_2]$  for LRC and LHC.

**Table 4-3.**  $\text{Ca(OH)}_2$  content for 3 specimens in each enclosure and deduced maximum mass of  $\text{CO}_2$  consumed compared to that obtained in the experimentation until the end - ACC

| System | $\text{Ca(OH)}_2$ (g) | Theoretical maximum consumption of $\text{CO}_2$ (g)* | Real mass of $\text{CO}_2$ consumed (g) | ROC (%)* |
|--------|-----------------------|---|---|----------|
| LRC    | 1600                  | 951   | 598                                     | 62.9     |
| LHC    | 1170                  | 696   | 464                                     | 66.7     |

\*Considering that the process is achieved for a  $100\% \text{ Ca(OH)}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3$  transformation

These results are compared with those obtained by the specimen weight gain in Table 4-4. The increase of the bulk density is 10% for LRC and LHC. It corresponds to approximately 25% in relation to the  $\text{Ca(OH)}_2$  content. Through this approach, a ROC of about 72% is obtained in both cases (according to Eq. 4-4 and Eq. 4-5). This percentage is close to that estimated with  $\text{CO}_2$  consumption. It must be mentioned that the water released by the carbonation process could be partially used for hydration. This can cause a minor error in the percentage estimation by weight gain.

**Table 4-4.** Calculation of the ROC by weight gain during ACC

|  | LRC          | LHC         |
|--|--------------|-------------|
| Bulk density after initial curing ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) | $638 \pm 8$  | $462 \pm 3$ |
| Bulk density after ACC ( $\text{kg.m}^{-3}$ )            | $702 \pm 13$ | $509 \pm 5$ |
| % increase in the bulk density                           | 10.0         | 10.2        |
| $W_G / \text{Ca(OH)}_2$ (%)                              | 25.3         | 25.1        |
| ROC (%)  | 72.1         | 71.5        |

## III. 2. Mechanical characteristics in compression

### III. 2. 1. Under natural conditions

#### III. 2. 1. 1 Compressive strength

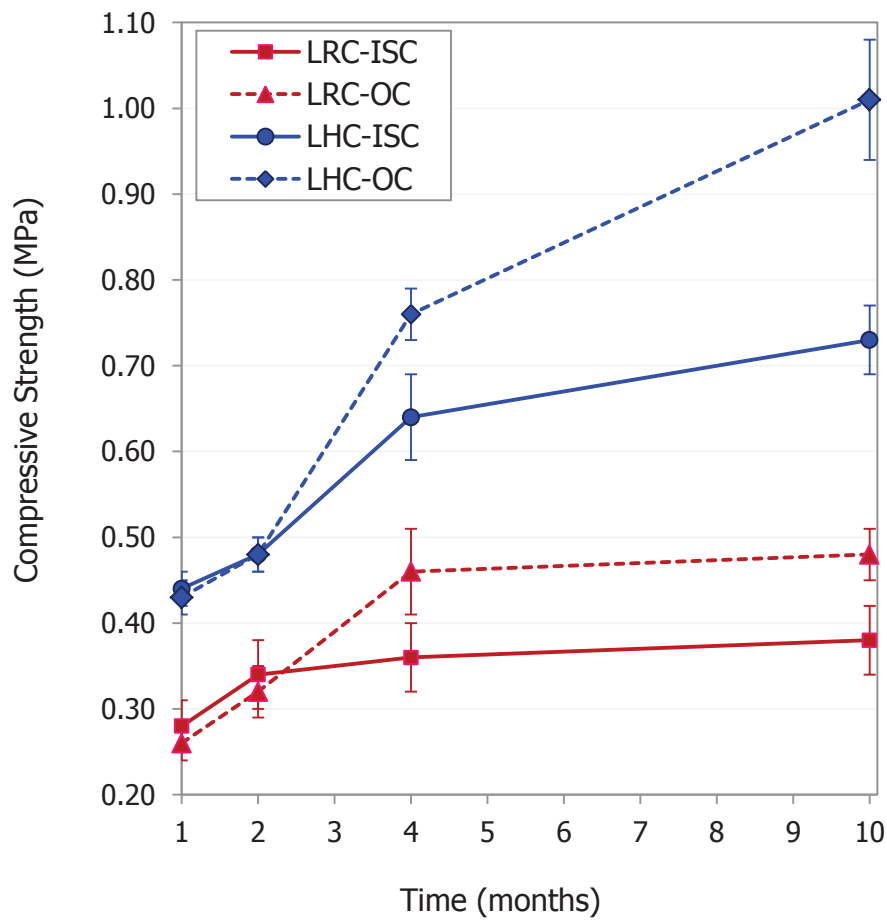
The compressive strength of the specimens for increasing ages is reported in Figure 4-7.

The first observation concerns the lower compressive strength of LRC compared to LHC regardless of curing conditions and age. This was already identified at early ages (until 2 months) on the previous work [168]. By following the strength evolution of these concretes until 10 months, it appears a ceiling effect for LRC. The strength seems to be limited between 4 months and 10 months whereas it continues to increase quite significantly for LHC. As a consequence, the strength gain over time for LHC is much greater. Its compressive strength after 10 months in ISC reaches  $0.73 \pm 0.03$  MPa whereas that of LRC is only  $0.38 \pm 0.04$  MPa.

Another important result is the difference between indoor and outdoor curing after 2 months. The strength gain is higher for specimens exposed outdoors whether for LRC or LHC. This highlights a sharp improvement of the carbonation process in the conditions which occurred during outdoor exposure (mostly %RH). Indeed, as it was shown before (Figure 4-1), RH mostly ranged between 45% and 75% during outdoor exposure curing and carbonation kinetics is known to be maximal between 50 and 70%. When RH is higher than 70%, pores tend to saturate with water making the diffusion of  $\text{CO}_2$  through the concrete very slow. On the other hand, when it is lower than 50%, pores tend to become dry and the dissolution of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  and  $\text{CO}_2$  necessary for the carbonation reaction has trouble to take place [84]. For outdoor curing conditions, the compressive strength of LHC increases from  $0.43 \pm 0.02$  MPa after 1 month to  $1.01 \pm 0.08$  MPa after 10 months (2.3 times higher).

The compressive strength outdoors is not improved during the first two months, which confirms that the improvement after this date is mostly due to enhanced carbonation. Indeed, at 50%RH, carbonation is expected to begin quite significantly only from 30 days according to the drying rate reported in Figure 4-2. On the other hand, the higher RH outdoors until 2 months has a great chance to delay the beginning of carbonation by hindering  $\text{CO}_2$  diffusion in the saturated pores at early ages.

The hydration of  $\text{C}_2\text{S}$  is known to be slower than that of  $\text{C}_3\text{S}$ . According to some authors, a large amount of  $\text{C}_2\text{S}$  can be hydrated only after 28 days in hydraulic lime-based mortars [95], [149]. In this way, the contribution of hydration can be considered in strength evolution over time. This also raises the question of the competition between carbonation and hydration observed by Cizer et al. [97]. Hydration reactions are enhanced under moist conditions whereas carbonation is promoted with evaporation of water.



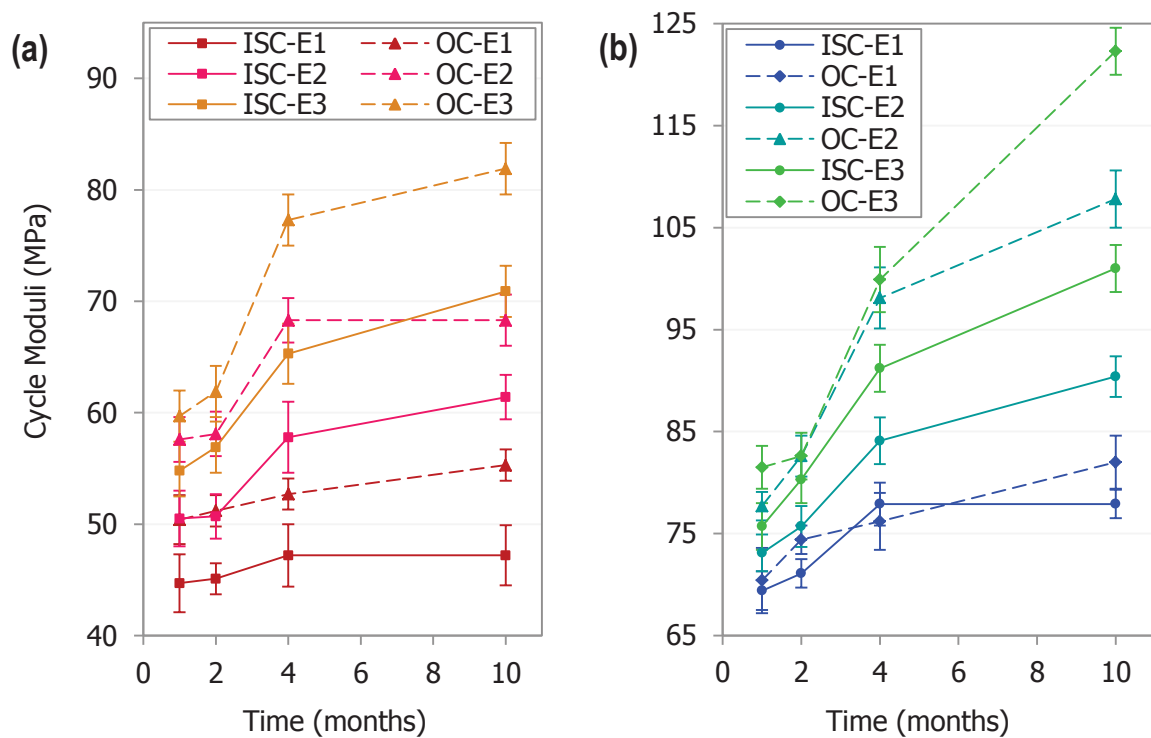
**Figure 4-7.** Compressive strength of LHC and LRC for increasing ages and different curing conditions (ISC: 20°C – 50%HR – OC: Outdoor exposure)

The higher mechanical strength for specimens cured outdoors is necessarily linked to the evolution of the lime binder hardening. However, the differences between LRC and LHC can also be explained by the bonding strength between aggregates and lime. Subsequently, the evolution of the chemical nature of the lime-based binder phases over time for both concretes will be investigated in order to compare the quality of the binder in each concrete.

### III. 2. 1. 2 Elastic moduli

The evolution of elastic moduli for increasing ages calculated on load cycles ( $E_1 - E_2 - E_3$ ) and for both concretes is represented in Figure 4-8 .

The trends are similar with a more pronounced ceiling effect for LRC compared to LHC. Moreover, both moduli and compressive strength are higher for specimens exposed outdoors and for LHC.



**Figure 4-8.** Elastic moduli calculated on load cycles for increasing ages: (a) LRC (b) LHC (ISC: 20°C – 50%HR – OC: Outdoor exposure)

The age and the curing conditions of the concretes can improve their hardening and thus their mechanical performances (compressive strength and stiffness). However, it should be underlined that the rate of strain at failure is not reduced with increasing ages and is about 6.5%. Even after 10 months, LRC and LHC have a strongly ductile behavior, particularly with the use of an important quantity of aerial lime in this study.

### III. 2. 1. 3 Dry bulk densities

Bulk densities of specimens cured in natural conditions for increasing ages are reported in Table 4-5.

**Table 4-5.** Bulk density of specimens for increasing ages in  $\text{kg.m}^{-3}$

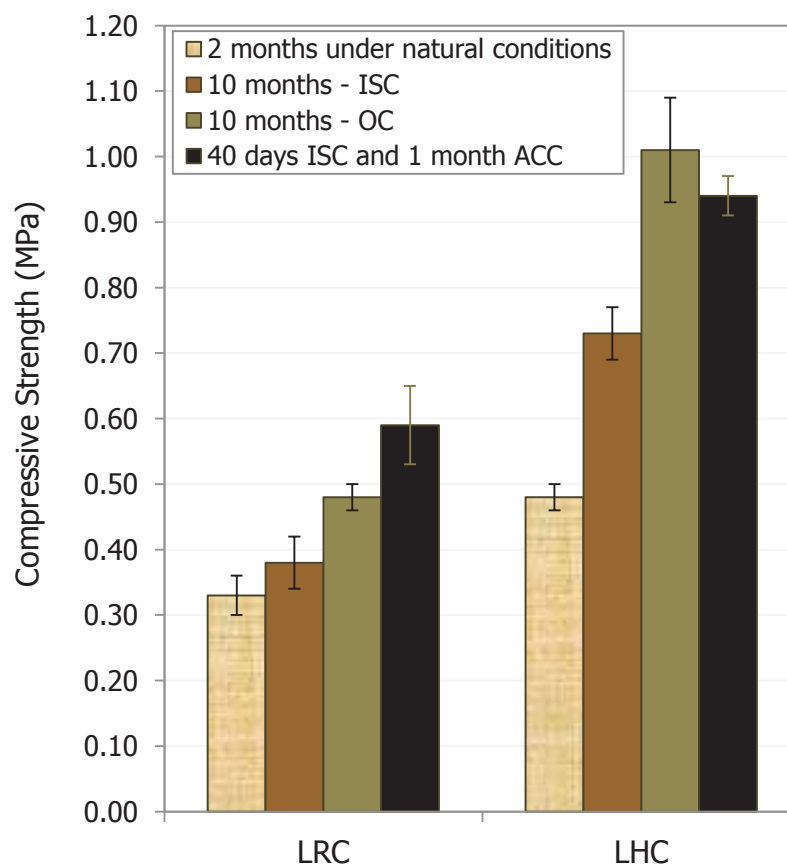
| Concrete | 1 month | 4 months | 10 months |
|----------|---------|----------|-----------|
| LRC-ISC  | 625 ± 2 | 642 ± 2  | 654 ± 3   |
| LRC-OC   | 666 ± 4 | 665 ± 6  | 687 ± 5   |
| LHC-ISC  | 454 ± 5 | 467 ± 3  | 476 ± 2   |
| LHC-OC   | 489 ± 4 | 494 ± 4  | 503 ± 3   |

It makes sense to follow the bulk density over time for specimens cured in ISC to have an indication of the carbonation process. The percentage increase in the bulk density up to 10 months is about 5%, giving a ROC of 33% after 10 months.

However, for specimens exposed outdoors, it is erroneous to refer to the weight gain to follow the carbonation process since these concretes are hygroscopic materials with an unstable density due to moisture uptake and release.

### III. 2. 2. After accelerated carbonation curing (ACC)

The compressive strength measured after the initial curing (40 days) and the accelerated carbonation curing during 1 month is reported in Figure 4-9. It is compared to compressive strength of the concrete specimens cured 2 months and 10 months under natural conditions.



**Figure 4-9.** Compressive strength of LRC and LHC specimens after ACC compared to natural conditions

The results show that the compressive strength after ACC is approximately equivalent to that obtained after 10 months of outdoor exposure. Indeed, the compressive strength of LHC almost reaches 1 MPa obtained after 10 months outdoors and LRC exhibits a compressive strength of  $0.59 \pm 0.06$  MPa which is even higher than that reached after 10 months

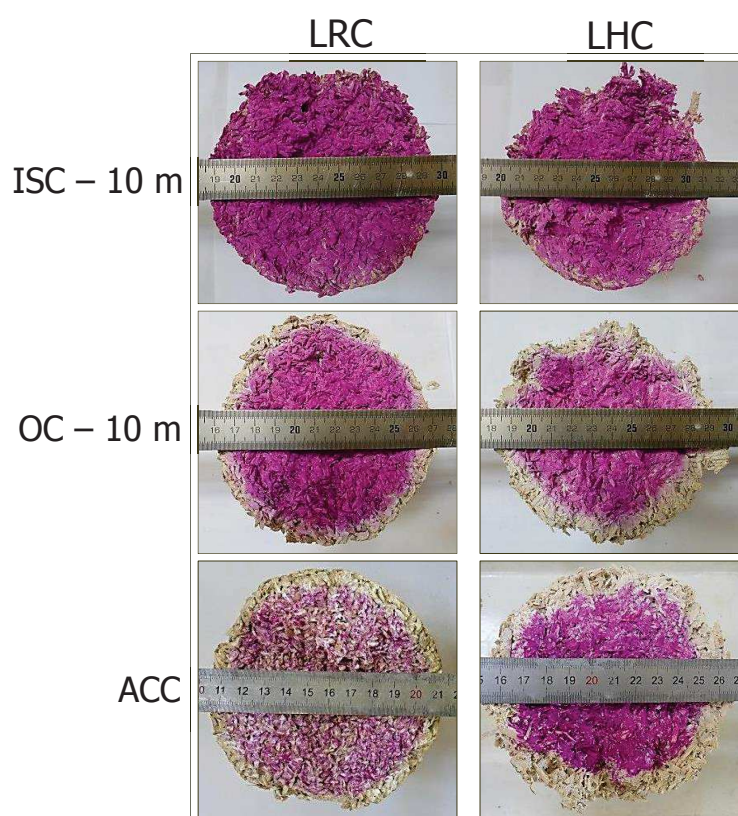
outdoors. Furthermore, the compressive strength after ACC was doubled if compared to that measured after 2 months under natural conditions (i.e. natural carbonation).

The trend is the same for cycle moduli. They are higher than those obtained after 10 months of outdoor exposure for LRC and range from 60 MPa to 105 MPa depending on the cycle whereas the cycle moduli of LHC after ACC are almost identical, ranging from 80 to 125 MPa.

### III. 3. Characterization and monitoring of the binder hardening

#### III. 3. 1. Phenolphthalein spray test

Carbonation profiles obtained by the phenolphthalein spraying test after 10 months under natural conditions (ISC-10m and OC-10m) and after ACC are reported in Figure 4-10 .



**Figure 4-10.** Cross sectional view of specimens after failure in compression a few seconds after spraying with phenolphthalein

For specimens stored in ISC, the section is almost entirely stained in pink with no differences between LRC and LHC. It does not mean in any way that lime is uncarbonated. As it was explained by Lawrence et al. [86], a stained area indicates a transitional state

between the start and the finish of the carbonation process. If pH is not low enough (higher than 9), the area remains stained. However, a carbonation front is visible for specimens exposed outdoors (OC-10m). The carbonation depth according to the colorless region is about 0.8 cm for LRC and 1.5 cm for LHC. This confirms that carbonation has been promoted in outdoor conditions as it was assumed according to mechanical strength (Figure 4-7 & Figure 4-9). After ACC, the carbonation front is approximately the same as that obtained after 10 months of outdoor exposure. However, the core of LRC specimens appears more carbonated than that of LHC as the bulk area is stained in pale pink.

### III. 3. 2. TGA investigations

#### III. 3. 2. 1 Carbonation

Time evolution of  $\text{CaCO}_3$  percentage in bulk samples (collected in the core of the specimens) was performed with the weight loss curves obtained by TGA and Eq. (4-7). The results obtained under natural conditions up to 10 months are first reported in Figure 4-11.

Considering that lime powder initially contains 10% of unburnt  $\text{CaCO}_3$  (Table 4-1), the core appears slightly carbonated after 1 month. Up to 4 months, the evolution of the  $\text{CaCO}_3$  content is similar regardless the curing conditions. However, at 10 months, the  $\text{CaCO}_3$  content is higher for specimens cured outdoors (Figure 4-11). The higher rate of carbonation for specimens exposed outdoors is only noticeable in the long term by TGA since the binder is collected in the core. Once again, it can be concluded that outdoor exposure has promoted carbonation because of better RH conditions which enhanced the dissolution of  $\text{CO}_2$  in the pores.

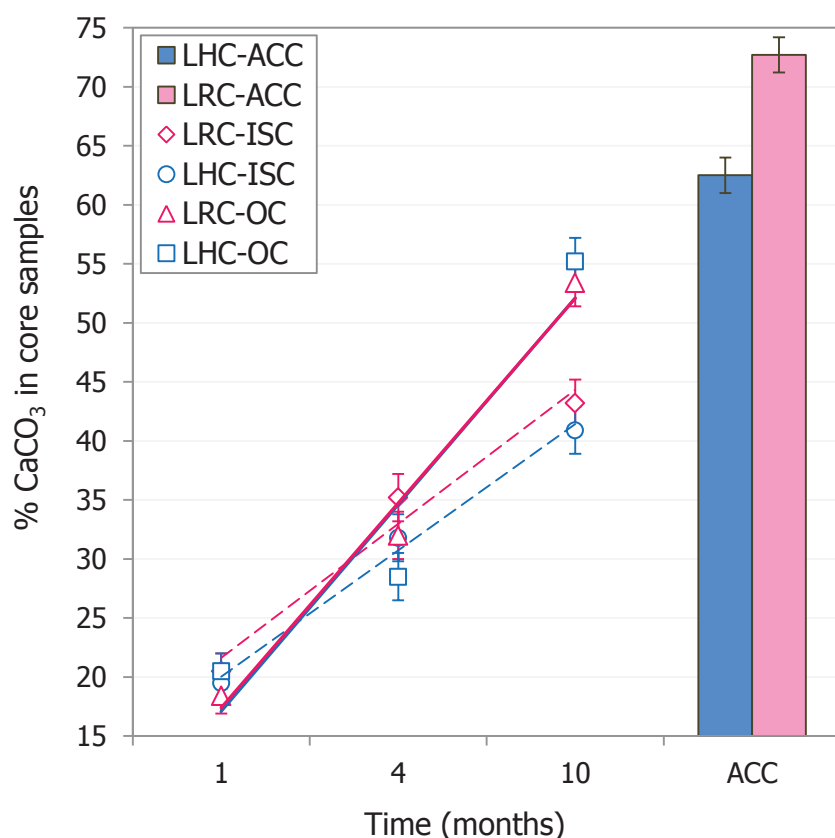
The investigations on surface samples collected on specimens cured indoors and outdoors have revealed that the surface is almost entirely carbonated after 1 month.

An important result of TGA investigations is the same evolution of the  $\text{CaCO}_3$  content over time for LRC and LHC. Under natural conditions, the phenolphthalein test and the analysis of the quantity of calcium carbonate in the bulk and on the surface of the specimens by TGA show that the higher compressive strength of LHC is not due to a better carbonation.

According to the mineralogical composition of the lime-based binder (Table 4-1) and molar masses of the chemical phases, the amount of  $\text{CaCO}_3$  in the bulk of LRC and LHC specimens leads to a rate of carbonation (ROC) after 10 months of about 40% under ISC and less than 60% under OC.

The  $\text{CaCO}_3$  content in the bulk of specimens after ACC is secondly reported in Figure 4-11. It is 72.7% for LRC and 62.5% for LHC. These percentages give a ROC of 80.4% for LRC and 67.3% for LHC.





**Figure 4-11.** %CaCO<sub>3</sub> in bulk samples of specimens up to 10 months under natural conditions and after ACC

ROC are reported in details in Table 4-6, compared with the two other methods used in the study (CO<sub>2</sub> consumption and weight gain) but also with ROC obtained after 10 months of curing under natural carbonation. The difference between the values depending on the method used is linked to measurement uncertainties, in particular for CO<sub>2</sub> consumption and weight gain. The average ROC (%) estimated by TGA after ACC is about 74%. It is 1.3 higher than that obtained after 10 months of outdoor exposure.

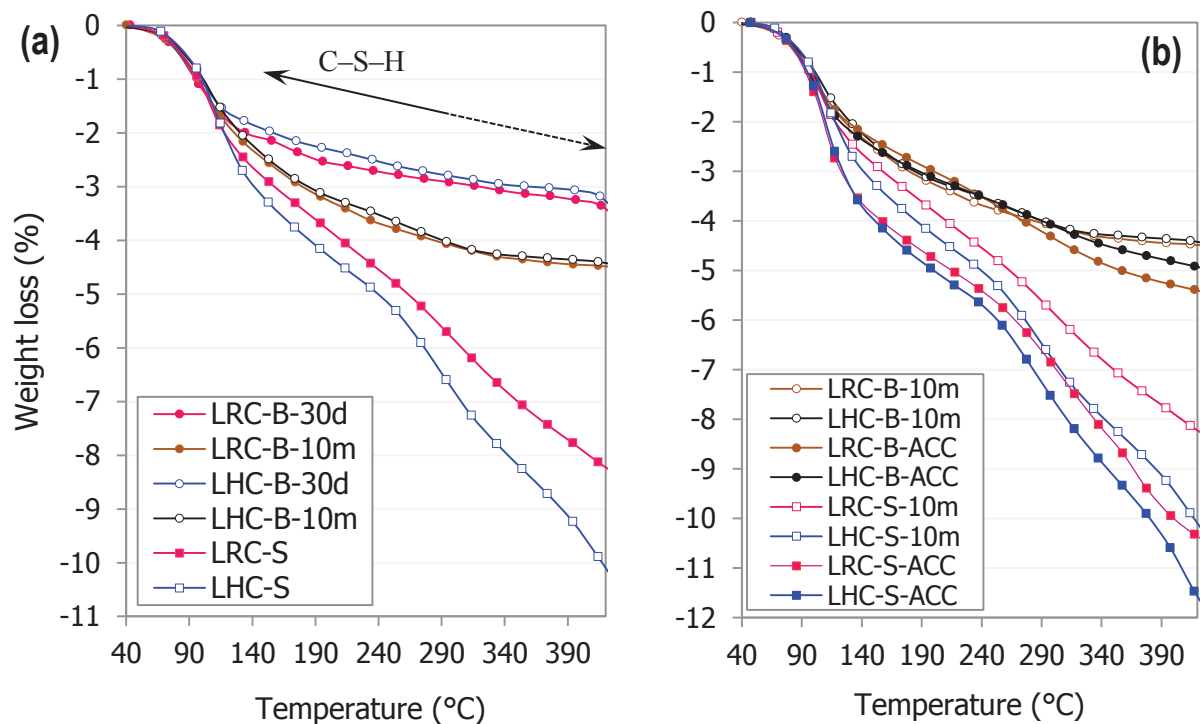
**Table 4-6.** Overview of ROC for specimens cured 10 months under natural conditions (ISC and OC) and after ACC with different methods (CO<sub>2</sub> consumption, weight gain and TGA)

| Curing | Time      | Concrete | CO <sub>2</sub> | Weight gain | TGA  |
|--------|-----------|----------|-----------------|-------------|------|
|        |           |          | ROC (%)         |             |      |
| ISC    | 10 months | LRC      | –               | 32.5        | 42.6 |
|        |           | LHC      | –               | 33.6        | 39.6 |
| OC     | 10 months | LRC      | –               | –           | 55.6 |
|        |           | LHC      | –               | –           | 57.9 |
| ACC    | After ACC | LRC      | 62.9            | 72.1        | 80.4 |
|        |           | LHC      | 66.7            | 71.5        | 67.3 |

TGA coupled with the phenolphthalein test showed that the final rate of carbonation at the end of ACC is approximately the same for both concretes as evidenced by ROC obtained by CO<sub>2</sub> consumption or weight gain providing an overall assessment of the carbonation process. However, CO<sub>2</sub> reactivity-diffusivity mechanisms seem to differ from each other, as shown by the ROC in the bulk determined by TGA. According to the results in the bulk of specimens after ACC, it can be deduced that LRC is more favorable to CO<sub>2</sub> diffusivity in the core than LHC. With a high CO<sub>2</sub> concentration, excess CO<sub>2</sub> which has not already reacted with available hydrated lime can penetrate deeper into the specimen. On the contrary, the local reactivity of CO<sub>2</sub> is better for LHC given that the unstained region is slightly bigger. This can be explained on the one hand by the lower amount of lime to carbonate in LHC (Table 4-2) and on the other hand by a barrier effect in LHC since CO<sub>2</sub> diffusivity throughout the totally carbonated area appears to have been hindered. In addition, this result can hardly be justified by the total porosity of LRC which is lower than that of LHC [168].

### III. 3. 2. 2 Hydration

The weight loss occurring between 100°C and 400°C by TGA is mainly due to the loss of water from C–S–H hydrates [180]. Results for this range of temperature are reported in Figure 4-12 and give a valuable indication of the hydration rate.



**Figure 4-12.** TGA curves of lime samples between 40°C and 400°C (a) Curing under natural conditions after 30 days (30d) and 10 months (10m) (b) Comparison with ACC ( B: Bulk – S: Surface)

Under natural conditions, the loss of water bound to C–S–H in bulk samples is the same for LRC and LHC regardless of concrete age and curing conditions (Figure 4-12a).

However, it can be noted that the hydration rate has increased between 30 days and 10 months to the same extent for LRC and LHC. Furthermore, the C–S–H content is higher on surface samples than in the bulk after 30 days. It has been previously shown that the carbonation rate has considerably increased in core samples from 30 days to 10 months and the surface is more carbonated than the core after 1 month. Therefore, a synergy effect between carbonation and hydration is assumed since the hydration rate is higher when the carbonation of hydrated lime is more advanced.

After ACC, the loss of water in core samples is slightly higher than that of core samples collected after 10 months of outdoor exposure especially for LRC (Figure 4-12b). This is quite well correlated with the rate of carbonation in core samples. The hydration of the surface is also slightly enhanced.

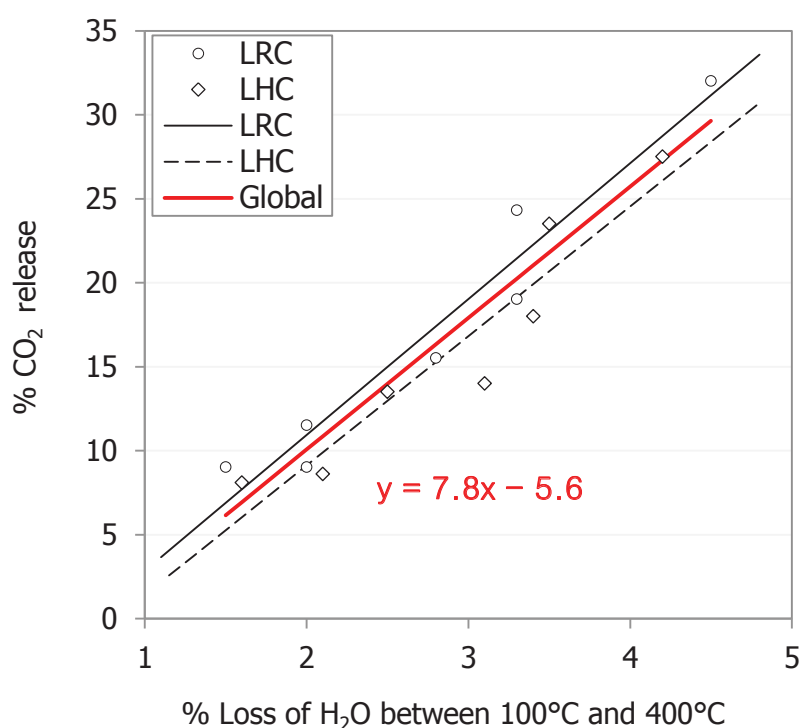
The correlation between carbonation and hydration is represented in Figure 4-13. The loss of water between 100°C and 400°C ( $H_2O$  bound to C–S–H) and the  $CO_2$  weight loss are reported for bulk samples collected in specimens under natural conditions (ISC and OC) from 1 to 10 months and after ACC. The surface samples are not considered in the graph because the weight loss between 250°C and 400°C is suspected to be partially attributed to the decomposition of cellulosic compounds. Although precautions were taken to remove the smallest plant particles, microparticles may have been collected on the rigid skin by scraping the aggregates. Besides that, the evolution of the C–S–H content correlates fairly well with the carbonation rate with a regression coefficient of about 0.9. This linear correlation shows that  $C_2S$  hydration is promoted by  $Ca(OH)_2$  carbonation. This can be explained by the water locally provided by the carbonation reaction which could benefit  $C_2S$  hydration, meaning that the initial mixing water is not effective to perform  $C_2S$  hydration at early ages. First, it could be justified by the high water absorption ability of plant aggregates [149].

According to Lanias et al. [95],  $C_2S$  hydration before 28 days is very low and proceeds gradually up to 1 year. Goñi et al. [181] have determined the hydration degree of  $C_2S$  paste cured under 100%RH and obtained 0.8 after 1 year. However, Xu et al. [180] have well reported the C–S–H growth from 1 hour up to 3 days in NHL lime mortars cured under 60%RH. Hydration time of  $C_2S$  should depend on curing conditions. The works of Cizer et al. [97] have shown that the hardening of calcium hydroxide and calcium silicate binders can suffer from a competition effect between carbonation and hydration. Carbonation can prevail over  $C_2S$  hydration at early age (1 month) for the following reasons:

- The relatively dry curing conditions (50%RH indoors - under 80%RH outdoors) which favor carbonation but slow down hydration;

- The significant presence of hydrated lime agglomerates which could prevent free mixing water access to unhydrated  $C_2S$  by trapping them.

In the longer term, when carbonation of hydrated lime is sufficiently advanced,  $C_2S$  hydration seems to be promoted by the water locally released as if hydration could only take place after a given rate of carbonation. Based on this assumption and considering that the linear correlation is linked to the stoichiometry of the carbonation reaction, the slope of the linear correlation ( $= 7.8$ ) leads to a molar ratio  $n(H_2O)/n(CO_2) \approx 0.3$ . According to this approach, about 30% of the water released by carbonation would be used for  $C_2S$  hydration at the most.



**Figure 4-13.** Correlation between %CO<sub>2</sub> release by decarbonation of CaCO<sub>3</sub> and loss of water bound to C–S–H hydrates for bulk samples under natural conditions and after ACC

### III. 3. 3. Conclusion about the quality of the lime-based binder

The results of the investigations led on the evolution of mineral phases of the lime binder for LRC and LHC have shown that hydration and carbonation rates of LRC up to 10 months under natural conditions are equivalent to those of LHC. The carbonation is even better for LRC after CO<sub>2</sub> curing. Consequently, the lower mechanical characteristics of LRC are not linked to a lower quality of the binder. The hardening is not more disturbed in one case than in another in a significant way.

Despite its relatively high bulk density (compared to LHC), the gradual hardening of LRC provides only a very low strength gain. As it was observed in Figure 4-7, LRC mechanical

strength is characterized by a ceiling effect. For an equivalent hardening of the lime-based binder, the compressive strength of LHC increased by 71% from 30 days to 10 months indoors and 135% outdoors. For LRC, it increased by 36% indoors and 70% outdoors. As a result, the strength gain of LHC over time is twice as high as that of LRC.

In light of these findings, the lower strength of LRC is necessarily explained by the bonding strength between rice husks and lime. A number of works underlined interfaces as the weakest part of hemp concretes. They mainly focus on fluid movements between hemp aggregates and binder (lignocellulosic extracts, migration of water). The two bio-based concretes studied in the paper have the particularity of being very different in terms of intrinsic properties of the aggregates. A large difference between their stiffness can lead to a different bonding strength with the matrix and create elastic compatibility problems. The poor bonding strength can also be justified by the different roughness and chemical composition of the external surface of the aggregates.

## IV. Conclusion

The main findings of this study are the following:

- The monitoring of the mechanical properties of rice husk (LRC) and hemp concretes (LHC) under natural conditions over time has shown that the strength gain of LHC is twice higher than that of LRC. Compressive strength and elastic moduli of LHC were already higher than those of LRC after 30 days. However, the rate of carbonation and hydration in LRC can be considered as very close to that of LHC. The binder was thus hardened in the same way. The lower mechanical performances of LRC are therefore attributed to a weaker aggregate–binder interface. Further studies are needed to investigate the microstructure of the binder surrounding the aggregates.
- Outdoor exposure enhanced carbonation kinetics, which enabled LHC to reach a compressive strength of  $1.01 \pm 0.08$  MPa after 10 months. This was attributed to the favorable %RH conditions for CO<sub>2</sub> diffusion and dissolution.
- Effects of an accelerated carbonation curing system (ACC) performed during one month were investigated. It led to an increase of the mechanical properties of both concretes, which were approximately equivalent to those obtained after 10 months of outdoor exposure. The compressive strength of LRC and LHC after ACC was doubled if compared to that measured after 2 months under natural carbonation. The rate of carbonation was estimated between about 65% and 80% depending on the method used.
- A correlation between carbonation of hydrated lime and C<sub>2</sub>S hydration of the lime-based binder was proposed in this paper. C<sub>2</sub>S hydration was probably promoted by the water locally released by Ca(OH)<sub>2</sub> carbonation. This shows that C<sub>2</sub>S hydration in this system

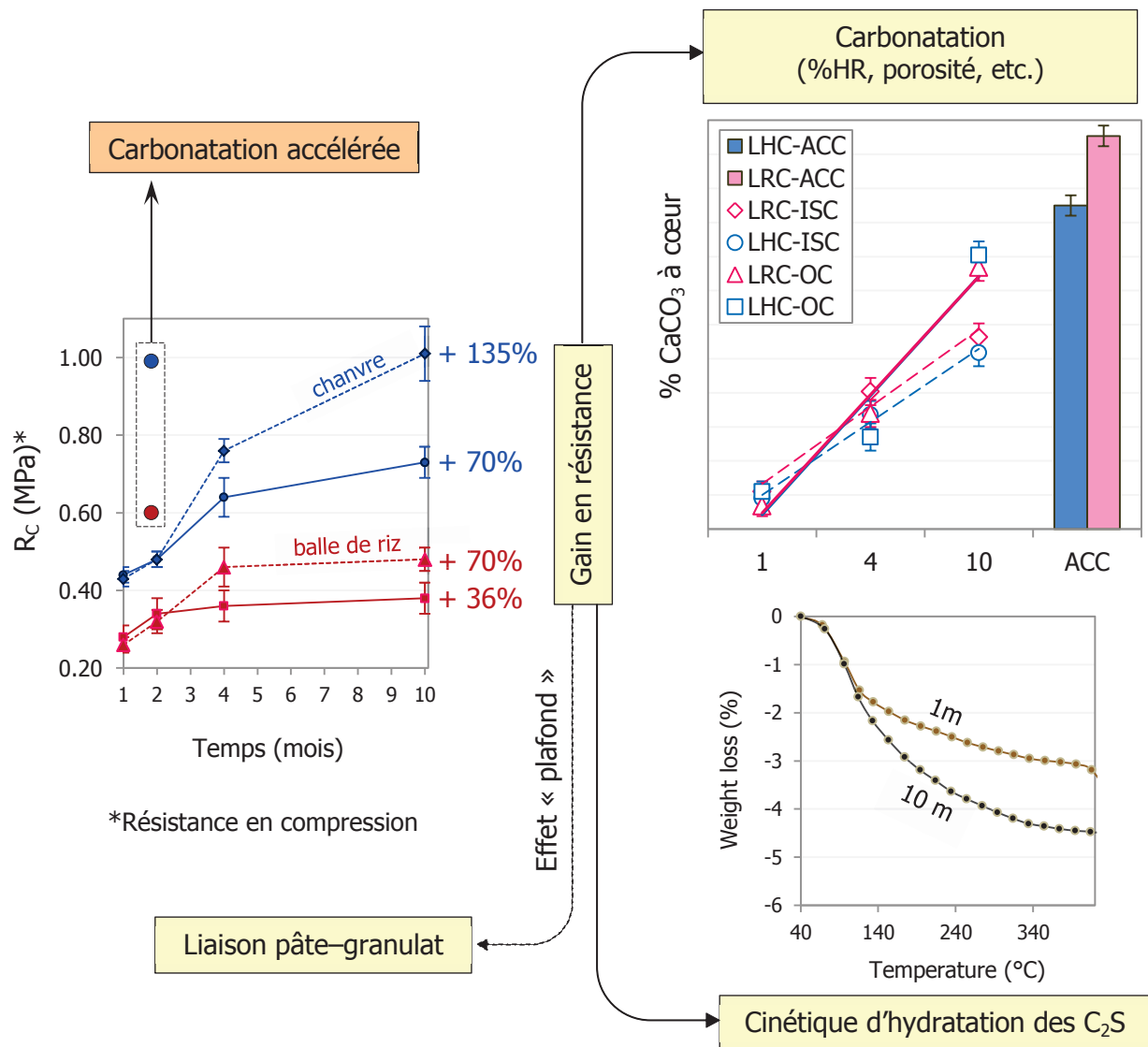
containing a big amount of hydrated lime is difficult and very long. The contribution of hydration has therefore to be considered in the strength over time. Further investigations about the influence of moist conditions on  $C_2S$  hydration will be carried out.

### **Acknowledgements**

The authors are grateful to Christian Buisson for the manufacturing of the  $CO_2$  curing system and his investment in the study. They also thank Marc Longerey for the compression testing program.

## **Bilan du Chapitre**

Ce chapitre concernait le suivi des performances mécaniques en compression des deux types de bétons conservés à l'intérieur à  $20^\circ C - 50\%HR$  ou exposés à l'extérieur durant 10 mois. Le durcissement du liant à base de chaux a été caractérisé aux différentes échéances de temps après chaque essai en compression. Le gain de résistance en compression en fonction du temps s'est montré assez important pour le béton à base de chanvre tandis qu'un plafonnement des performances mécaniques a été observé pour le béton à base de balle de riz. Ainsi, après une cure en exposition extérieure, la plus favorable à la cinétique de carbonatation, le béton à base de balles de riz atteint seulement une résistance en compression de 0,5 MPa après 10 mois lorsque le béton à base de chanvre atteint 1 MPa. L'évolution des performances mécaniques dans le temps pouvait alors être le reflet d'un durcissement du liant plus défavorable dans le cas du béton à base de balles de riz (réseau poreux, ratio massique E/L, retard ou inhibition de l'hydratation par les extractibles solubles) ou d'une liaison pâte-granulat de plus mauvaise qualité entre la balle de riz et le liant à base de chaux. Le liant a alors été prélevé et analysé par ATG afin de caractériser le taux de carbonatation et suivre l'évolution des phases hydratées. Ce chapitre a mis en évidence une cinétique de durcissement par hydratation et carbonatation équivalente pour les deux bétons fabriqués à base de chanvre ou de balles de riz. La maturation du liant arrive à un stade similaire après 10 mois de conservation. Ces résultats démontrent ainsi que les performances mécaniques du béton à base de balles de riz sont limitées par la qualité de la liaison mécanique liant/particule (Figure 4-14).



**Figure 4-14.** Schéma récapitulatif

La cure en carbonatation accélérée a permis d'obtenir une résistance en compression intéressante 2 mois après la fabrication des éprouvettes, approximativement équivalente à celle obtenue après 10 mois de cure en exposition extérieure. Avec un taux de carbonatation à cœur très élevé (80%), le béton à base de balles de riz atteint 0,6 MPa suite à la cure en présence de CO<sub>2</sub>. Cette valeur reste néanmoins faible comparée à celle du béton de chanvre. La troisième partie du travail de thèse devra alors s'orienter sur l'amélioration de la liaison chaux-balle de riz qui reste probablement un facteur limitant pour obtenir de meilleures performances.

Le suivi du durcissement en conditions naturelles a par ailleurs permis de mettre en évidence la contribution de l'hydratation des C<sub>2</sub>S à l'évolution de la résistance mécanique jusqu'à 10 mois de conservation. La cinétique d'hydratation très lente semble être corrélée avec le degré d'avancement de la carbonatation, ce qui suppose que l'hydratation des C<sub>2</sub>S



est favorisée par l'eau apportée localement suite à la réaction de carbonatation. Ce résultat suggère notamment que les conditions d'humidité utilisées dans ce chapitre (globalement de 50% à 75%HR) sont certes optimales pour la carbonatation aérienne mais sont trop sèches pour une hydratation optimale des  $C_2S$  de la chaux hydraulique.

La suite de ce travail s'intéressera donc également à l'influence des conditions de cure (température et humidité relative) sur la cinétique d'hydratation des  $C_2S$  du liant à base de chaux afin d'étudier la possibilité d'accélérer le développement des résistances mécaniques à court terme par la formation plus importante de C-S-H.

# Chapitre 5

## **Effet des conditions de cure et d'un traitement des granulats à l'eau de chaux sur les propriétés mécaniques des agrobétons**

### **Préambule**

La troisième partie du travail s'appuie sur les résultats obtenus lors du chapitre précédent qui nous a amené à étudier ensuite l'effet de deux procédés différents sur les performances mécaniques des agrobétons.

(1) Il a été mis en évidence que la cinétique d'hydratation des  $C_2S$  contenus dans la chaux hydraulique est particulièrement lente à cœur des agrobétons. Une progression de l'eau liée aux C-S-H est en effet visible jusqu'à 10 mois de conservation dans des conditions standards ( $20^{\circ}C - 50\%HR$ ). Ce résultat est plutôt en accord avec la littérature à propos de la progression de l'hydratation des  $C_2S$  dans les mortiers de chaux hydraulique conservés généralement à  $65\%HR$ . Toutefois, la mise en évidence d'une corrélation de l'hydratation avec le taux de carbonatation a montré que celle-ci s'effectue à long terme probablement grâce à l'eau apportée localement par la carbonatation. De ce fait, on imagine bien que les conditions de cure initiales ( $50\%HR$ ) mènent à un séchage trop rapide du liant, ne favorisant pas l'hydratation au jeune âge. La cinétique d'hydratation doit donc pouvoir être accélérée en fonction de l'humidité relative du milieu environnant. Dans ce chapitre, il s'agira alors d'évaluer en premier lieu l'effet d'une cure en humidité saturée ( $95\%HR$ ) durant 7 ou 21 jours sur le durcissement du liant au travers de l'étude de mortiers à base de chaux. Dans un second temps, cette cure humide sera appliquée aux agrobétons. Les essais de résistance en

compression seront ensuite effectués à 28 jours et la conservation à 95%HR sera comparée à la conservation dite standard pour laquelle les éprouvettes sont directement exposées à 50%HR dès le démoulage soit 24 heures après la fabrication.

Dans la mesure où l'objectif du travail est toujours d'obtenir de meilleures performances mécaniques après 1 mois de cure, la conservation à 95%HR sera également accompagnée d'une élévation de température à 50°C durant les 7 premiers jours de cure pour un lot d'éprouvettes. Cette étude vise à accélérer l'hydratation des C<sub>2</sub>S par thermo-activation. L'effet sera également étudié sur les mortiers et sur les agrobétons.

(2) Le chapitre précédent a également montré que malgré une cinétique de durcissement du liant équivalente pour les deux agrobétons durant 10 mois de conservation naturelle, le développement temporel de la résistance en compression est nettement plus fort dans le cas du béton de chanvre dont la teneur en liant est pourtant plus faible. L'effet « plafond » constaté pour l'évolution des caractéristiques mécaniques (résistance en compression et module) dans le cas du béton à base de balles de riz a été attribué à une liaison pâte-granulat de moins bonne qualité. Un traitement des granulats végétaux à l'eau de chaux saturée est alors mené dans ce chapitre, notamment dans l'objectif d'améliorer la surface de la balle de riz pour une meilleure adhésion physico-chimique avec le liant à base de chaux. Les granulats seront caractérisés avant et après le traitement et l'effet sur la résistance en compression à 28 jours sera étudié.

Ce chapitre fait l'objet d'un troisième article (C) soumis dans « Construction and Building Materials ».

## Article C

(Published 18 November 2015 in Construction and Building Materials)

### Effect of curing conditions and $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated aggregates on mechanical properties of rice husk and hemp concretes using a lime-based binder

Morgan Chabannes, Eric Garcia-Diaz, Laurent Clerc\*, Jean-Charles Bénézet

C2MA, Ecole des Mines d'Alès, 6 Avenue de Clavières, 30319 Alès Cedex, France

\*corresponding author: Laurent.Clerc@mines-ales.fr

#### ABSTRACT

This study dealt with the effect of two different processes on the mechanical performances of lightweight insulating plant-based concretes using hemp hurd or rice husk and a lime-based binder. The first process was a lime-water treatment of plant aggregates prior to incorporating them in the mix and the second one consisted in exposing concrete materials to moist curing and elevated temperature.

Chemical and textural modifications of plant aggregates after treatment were investigated by infrared spectroscopy (FTIR) and scanning electron microscopy (SEM). Compression tests were conducted on concretes using raw or treated aggregates after 28 days of curing under standard conditions (20°C – 50%RH).

Effect of high relative humidity (95%RH) and elevated curing temperature (50°C) was first studied on lime-based mortars. Binder hardening was investigated by means of thermogravimetric analysis (TGA) and back-scattered electron imaging (BSE) on polished cross sections. Then, the same curing process was performed on plant-based concretes and the transition zone between plant aggregates and binder was analyzed by SEM. Compression tests were conducted after 28 days for both materials.

Results show that lime-water treatment improved compressive strength of rice husk-based concrete but halved that of hemp concrete. As regards the impact of curing conditions, it was shown that compressive strength of hydraulic lime mortars after 28 days can be strongly increased with moist curing and elevated temperature. However, plant-based concretes suffer from a high leaching of polysaccharides in the binder and from a transition zone between aggregates and binder of very poor quality when they are subjected to moist

curing. This led to unchanged or even lower mechanical performances of plant-based concretes in the case of high RH and elevated temperature compared to 20°C – 50%RH.

## Keywords

Plant aggregates, Lime-water treatment, Bio-based concretes, Bonding strength, Lime mortars, Curing conditions, Compressive strength, C<sub>2</sub>S hydration

## I. Introduction

In recent years, plant-based concretes have been the focus of researchers with the aim of providing comfortable conditions in buildings and using materials with low embodied energy. Among various renewable lignocellulosic by-products, hemp hurds are frequently used by eco-builders. They correspond to the woody core of hemp stalks and are typically associated with a lime-based binder to design Lime and Hemp Concrete (LHC) which is a sustainable and carbon negative plant-based material with insulating properties [118].

Lime and Rice husk Concrete (LRC) was developed in previous studies [168], [182]. It is a new material using whole rice husk as plant aggregate. This crop residue coming from rice hulling is a local resource in the south of France. It can be mixed with a lime-based binder without any shredding process. LRC is a lightweight concrete (bulk density lower than 800 kg.m<sup>-3</sup>) with thermal conductivity similar to that of LHC [168].

The compressive strength of LRC after one month is only about 0.3 MPa for a binder-to-aggregate mass ratio of 2. It is above the minimum threshold value recommended by the professional rules for the use of hemp-based concretes for infilling walls (>0.2 MPa) [103]. However, it remains lower than that of LHC using a same binder-to-aggregate mass ratio [168]. In addition, LRC shows a low strength gain over time despite the significant increase in the carbonation rate [182].

The chemical composition of plant-derived aggregates implies the existence of a complex interface with the binder. Hemp hurds consist of 48–50% cellulose, 12–20% hemicelluloses, 21–24% lignin and 8–12% extractives [35], [124], [165]. Rice husks contain organic substances and 20% of silica ash [183]. Organic contents are 25–35% cellulose, 18–21% hemicelluloses, 26–31% lignin and approximately 3% extractives [48], [144], [183]. Some authors focused on the influence of carbohydrate extracts on setting and early strength development of hemp concretes [35], [118]. Diquelou et al. [35] showed that hemp hurds coming from certain hemp varieties can have irreversible effects on the long-term setting of LHC when Portland cement is used. Another study [118] reported a strong delay in the setting time of lime-pozzolan pastes blended with hemp-water extracts, thus reducing their

early age strength without affecting their ultimate compressive strength. Indeed, sugars and pectins are known to retard hydration by trapping calcium ions [165]. Furthermore, Walker et al. [118] well demonstrated that hemp extracts do not alter carbonation responsible for the hardening of hydrated lime (aerial calcic lime). These results together with our previous study reporting the same hardening kinetics for both concretes (LHC and LRC) [182] lead to orientate research towards the influence of some surface treatments on the adhesive strength (e.g. chemical bonding, mechanical interlocking, surface hydrophilicity). Indeed, the most likely explanation for the lower mechanical performances of LRC is the low adhesion of rice husks with the binder. According to Nozahic et al. [44], the adhesion process is mainly governed by surface chemistry, roughness and water affinity of aggregates. Some authors have dealt with the effect of a calcium hydroxide treatment of hemp hurds on the mechanical properties of hemp concrete. Despite the removal of amorphous components and the deposit of calcium carbonate on aggregate surface but also the improvement of interfacial adhesion, Številová et al. [123] and Nozahic [10] have both found a decrease in the compressive strength of hemp concrete using  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated hemp hurds compared to raw ones. Moreover, according to the studies previously cited, this result appears to be unconnected with the type of binder. As regards rice husk concrete, only the study of Salas et al. [2] interested in using treated rice husk with a lime solution before mixing it with Portland cement. In this case, the treatment improved the compressive strength of the final concrete but no characterizations of rice husks after this treatment were provided in order to explain such a result.

When using lime as eco-friendly binder, carbonation contributes towards strength as the plant-based concrete ages. Then it is possible for LHC to reach 1 MPa after less than one year [25], [182]. Under optimal conditions for carbonation (65%RH), Lanas et al. [95] have shown that  $\text{C}_2\text{S}$  hydration mainly occurs after one month in hydraulic lime mortars (NHL). Therefore, its contribution to strength before this date is low. In a previous study [182], it was demonstrated that  $\text{C}_2\text{S}$  hydration proceeds gradually up to 10 months in correlation with the carbonation rate of plant-based concretes using hydraulic lime. However, hydration time of  $\text{C}_2\text{S}$  should depend on temperature and relative humidity. This is the case for  $\text{C}_3\text{S}$  hydration in cement-based materials. According to many researchers [58]–[60], exposure of ordinary concrete to high temperatures (40–60°C) increases the strength development at early age. The effect of the curing temperature on the hydration degree is well described by the Arrhenius law by which hydration kinetics is accelerated by thermal activation leading to thicker C–S–H rims [61]. In the case of Portland cement for which hydration kinetics of  $\text{C}_3\text{S}$  is fast, the effect of a high initial curing temperature on compressive strength is clearly visible until about 3–7 days [58]. The ultimate compressive strength is in fact achieved at an earlier age. The effect of the heat treatment is strongly linked to the apparent activation

energy of the binder used. For instance, lime-pozzolan cements have much higher hydration activation energy than Portland cement. As a consequence, these materials prove to be more sensitive to curing temperature according to Shi and Day [83]. To the best of our knowledge, no studies have been made on the acceleration of hydration in hydraulic lime-based materials (e.g. NHL mortars) by increasing the initial curing temperature. Since the carbonation process is not the only mechanism responsible for their long strength development (up to many months), thermal activation of  $C_2S$  hydration could provide an effective strength gain after one month. Concerning the effect of relative humidity, the works of Grilo et al. [94], [98] but also the study of Arizzi et al. [99] have well reported the increase in the compressive strength of NHL mortars subjected to moist curing ( $RH > 90\%$ ) if compared to a more standard curing around  $60\%RH$ . Grilo [98] attributed these results to the higher hydration degree under high  $RH$ . Arnaud and Gourlay [25] have shown that high relative humidity ( $> 75\%RH$ ) negatively affect the mechanical strength of LHC in compression. They explained this result by the water-blocking of pores thus limiting  $CO_2$  diffusion and carbonation of calcic lime. However, they also obtained a decreasing in compressive strength using hydraulic binders.

The first objective of this study is to investigate the effect of a lime-water treatment of rice husks on their surface chemistry and morphology and to perform compression tests on LRC after a curing under standard conditions ( $20^\circ C - 50\%RH$ ) during one month. Results will be compared with those performed on hemp hurds and LHC. This first part is conducted in the objective of improving the bond strength especially between rice husks and lime in the hope of achieving a higher compressive strength for LRC after one month. A better understanding of this treatment is also expected by comparing its effect on two different aggregates.

The second part of the study focuses on the effect of moist curing ( $95\%RH$ ) and elevated curing temperature ( $50^\circ C$ ) on the compressive strength of lime-based mortars and plant-based concretes after 28 days. More research is needed to understand the effect of high relative humidity on plant-based concretes. Moreover, this was unexplored before on LRC as this material is quite novel.



## II. Materials and methods

### II. 1. Lime-water treatment of plant aggregates

#### II. 1. 1. Treatment procedure

Plant aggregates were soaked for 24 hours in a saturated lime solution ( $\text{Ca}(\text{OH})_2 = 2 \text{ g.L}^{-1}$  at  $20^\circ\text{C}$  and  $\text{pH } 12.7$ ). Aggregate on lime-water weight ratio was 0.02 and aggregates were soaked under agitation in large containers. Following the treatment, aggregates were dried at  $60^\circ\text{C}$  for 48 hours. As mentioned by Nozahic et al. [10], this kind of treatment does not change significantly the density of the aggregates. They actually found a recovering factor of 0.996 with hemp hurds treated with a lime-milk. This was confirmed in the present paper studying hemp hurds and rice husks for which the mass loss was less than 1%. It was not considered sufficiently high to be taken into account in next investigations.

#### II. 1. 2. FTIR spectroscopy and SEM observations of aggregates

FTIR spectra of raw (untreated) and  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated aggregates were recorded with a Brucker IFS66 spectrometer in attenuated total reflectance (ATR) mode in order to reveal chemical changes on their surface. For rice husks, both concave and convex surfaces were analyzed.

Structural changes and deposits after the lime-water treatment were investigated by means of scanning electron microscopy (SEM) FEI 200 Quanta FEG.

#### II. 1. 3. Water absorption

As the water absorption ability of plant aggregates can be modified after treatment, these latter were tested in absorption. Particles were dried for 48 hours at  $105^\circ\text{C}$  prior to immersing them in water during 5 minutes. Then, particles were centrifuged and the water uptake was estimated, giving the absorption coefficient used to determine the amount of prewetting water [168]. The absorption rate remains unchanged for hemp hurds and it increases slightly for rice husks (Table 5-1). Considering the standard deviation of the measurements, it was decided to use the same coefficient to manufacture plant-based concretes using raw or treated aggregates.

**Table 5-1.** Absorption rate of raw (R) and lime-water treated (LWT) aggregates

| Aggregates |     | Absorption rate after 5 minutes (%) |
|------------|-----|-------------------------------------|
| Rice husks | R   | 100 ± 13                            |
|            | LWT | 125 ± 12                            |
| Hemp hurds | R   | 201 ± 22                            |
|            | LWT | 202 ± 11                            |

## II. 2. Samples preparation and manufacturing

### II. 2. 1. Lime mortars

Mortars were prepared according to NF EN 459–1 with three different lime binders:

- Hydraulic lime NHL3.5 (from Lafarge, France).
- Aerial calcic lime CL90-S (from Saint-Astier, France).
- A mixture of NHL3.5 and CL90-S at 50/50 wt. % (noted NHL3.5/CL90-S).

Chemical and mineralogical composition of lime binders is detailed in Table 5-2.

**Table 5-2.** Chemical and mineralogical composition of lime binders in weight percentages

| Lime                       | CaO   | SiO <sub>2</sub> | Ca(OH) <sub>2</sub> | C <sub>2</sub> S | CaCO <sub>3</sub> |
|----------------------------|-------|------------------|---------------------|------------------|-------------------|
| NHL3.5* [94], [149], [182] | 60-70 | 6-10             | 45                  | ~30              | 8-10              |
| CL90-S* [104]              | >70   | –                | 85                  | –                | 8-10              |
| NHL3.5/CL90-S [182]        |       |                  | 65                  | ~15              | 8-10              |

\*LOI: NHL3.5 ~ 15% - CL90-S ~ 25% [104]

Standardized siliceous sand (in accordance with NF EN 196–1) was used as aggregate and all mortars were mixed with the same aggregate-to-lime ratio of 2.75:1 by mass [184]. The amount of water was set in order to achieve a mortar flow of 165 ± 10 mm after the flow table test. The flow was determined with a truncated cone mould placed on the flow table and filled with freshly mixed mortar in two equal layers and tamped 10 times. The cone was then lifted 30 seconds later and the table was dropped 15 times before measuring the final diameter of the mortar [184]. Water-to-binder mass ratios (W/B) of mortars according to the flow table test are reported in Table 5-3.

After blending, mixtures were placed in prismatic 40×40×160 mm<sup>3</sup> moulds. Specimens were compacted using a vibration table in two layers with a shaking frequency of 60 times/60 seconds. Table 5-3 shows the composition of three prismatic mortars for each mortar type.

**Table 5-3.** Mix proportions of lime-based mortars

| Mortar type   | Mass ratios    |      | Composition (g) |            |       |
|---------------|----------------|------|-----------------|------------|-------|
|               | Aggregate:Lime | W/B  | Lime            | Aggregates | Water |
| NHL3.5        | 2.75:1         | 0.56 | 392             | 1080       | 220   |
| NHL3.5/CL90-S | 2.75:1         | 0.62 | 392             | 1080       | 243   |
| CL90-S        | 2.75:1         | 0.71 | 392             | 1080       | 278   |

## II. 2. 2. Plant-based concretes

Two different aggregates were used to design plant-based concretes: whole natural rice husks coming from a nearby rice field (Biosud, France) and commercial hemp hurds (FRD, France). These aggregates were mixed with a mixture of NHL3.5 and CL90-S at 50/50 wt. %. Specimens were designed with a binder-to-aggregate mass ratio (B/A) of 2. The mixing water ( $W_m$ ) was taken in such a way that  $W_m/B = 0.5$  and the prewetting water ( $W_p$ ) was determined using the water absorption coefficient of aggregates after 5 minutes. The final water-to-binder mass ratio (W/B) was calculated by adding prewetting and mixing water. Concrete specimens were manufactured by means of manual compaction in  $\Phi 110 \times 220$  mm<sup>3</sup> cylindrical moulds with a steel device. Mix proportions are reported in Table 5-4.

**Table 5-4.** Mix proportions and bulk density of plant-based concretes in the fresh state

| Concrete | B/A | W/B | Composition (kg.m <sup>-3</sup> ) |            |       |       | Density (kg.m <sup>-3</sup> ) |
|----------|-----|-----|-----------------------------------|------------|-------|-------|-------------------------------|
|          |     |     | Binder                            | Aggregates | $W_p$ | $W_m$ |                               |
| LRC      | 2   | 1   | 395                               | 195        | 195   | 195   | 980                           |
| LHC      | 2   | 1.5 | 285                               | 145        | 285   | 145   | 860                           |

## II. 3. Curing conditions

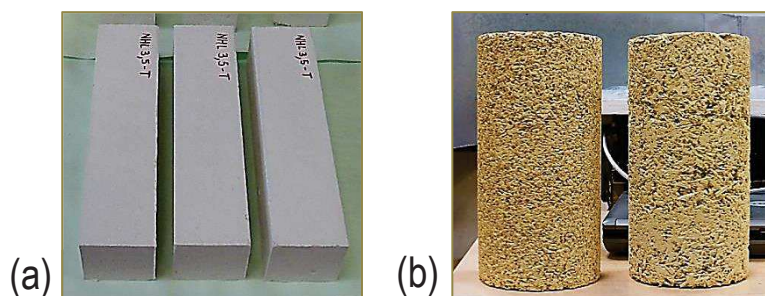
After casting, all specimens were first cured in their mould during 24 hours. Lime-based mortars were placed in airtight bags and covered with a damp cloth to restrict moisture loss and prevent shrinkage [184] and plant-based concrete specimens were covered by lips.

Thereafter, both kinds of materials (Figure 5-1) were subjected to different curing conditions:

- Indoor Standard Conditions (ISC) in a climate-controlled room at 20°C and 50%RH.
- Moist Curing (MC) in airtight enclosures filled with about 5 cm of water to ensure saturated conditions (95%RH) and placed in the room at 20°C.
- Moist curing with elevated temperature: Thermal Activation (TA). In this case, specimens

were cured under the same conditions as MC but airtight enclosures with saturated humidity were placed in the oven at  $50 \pm 2^\circ\text{C}$ .

For moist-cured and thermally activated samples, temperature and relative humidity were controlled with a measuring instrument (Almemo 2890-9).



**Figure 5-1.** (a) Prismatic lime mortars (b) Plant-based concretes

Curing histories of the specimens are given in Table 5-5.

**Table 5-5.** Curing histories of lime mortars and plant-based concretes specimens (ISC: Indoor Standard Conditions, MC: Moist Curing, TA: Thermal Activation)

| Age (days)        |         | 0            | 7            | 21           | 28 |     |
|-------------------|---------|--------------|--------------|--------------|----|-----|
| Curing conditions | 28d-ISC | 20°C – 50%RH |              |              |    | CT* |
|                   | 7d-MC   | 20°C – 95%RH | 20°C – 50%RH |              |    |     |
|                   | 7d-TA   | 50°C – 95%RH | 20°C – 50%RH |              |    |     |
|                   | 21d-MC  | 20°C – 95%RH |              | 20°C – 50%RH |    |     |

\*CT: Compression test

Compression tests were performed after 28 days for each type of curing. Lime mortars exposed to moist curing for a long period (noted 21d-MC) are removed from the enclosure 7 days before the compression test and cured under ISC in order to ensure that all samples were tested with the same water content. Loss of water over time was monitored for all samples. After day 8, prismatic mortars maintained an almost constant weight.

The drying kinetics of plant-based concretes at 20°C and 50%RH is different. It has already been measured in previous works [168], [182]. About 25 days are necessary to reach constant weight. Before being tested, water-saturated specimens were placed in a drying oven at 50°C until the mass has reached that of samples cured 28 days under ISC (48 hours). This step is important to prevent water from disrupting mechanical properties measurements [25].

Plant-based concretes manufactured with  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated aggregates were compared to those using raw aggregates under 20°C and 50%RH (28d-ISC in Table 5-5).

## II. 4. Compressive strength

### II. 4. 1. Lime mortars

Mechanical tests on lime mortars subjected to different curing conditions were conducted according to NF EN 459–2. For each mortar type, 3 prismatic specimens were first subjected to three-point flexural tests using a flexural-compression testing machine 3R-RP40 with a loading rate of  $10 \text{ N.s}^{-1}$  [75]. Due to their very low value, especially for CL90-S mortars, flexural strengths were not reported in the results. Compressive strength tests were executed on the two fragments resulting from flexural tests in such a way that 6 cube specimens ( $40 \times 40 \times 40 \text{ mm}^3$ ) are tested in compression for each mortar type and curing. Compression tests (stress-controlled) were also carried out with a 3R-RP40. The loading rate was  $50 \text{ N.s}^{-1}$  [75].

### II. 4. 2. Plant-based concretes

Compression tests were performed on plant-based concretes subjected to different curing conditions and designed with raw or  $\text{Ca(OH)}_2$ -treated aggregates.

An electromechanical testing machine (MTS Criterion) was used and the loading rate was  $5 \text{ mm/min}$ . Cycles of loading/disloading were applied for 1%, 2% and 3% strain and the disloading was performed until the stress reaches 50% of its initial value.

Compressive strength was defined as the maximum stress at failure and elastic modulus was determined as the average of the three elastic moduli obtained on loading cycles.

## II. 5. Thermal analysis (TGA)

The binder hardening of lime-based mortars and plant-based concretes was characterized by means of thermogravimetric analysis (TGA) with a STA 409 Cell, Netzsch.

Matrix samples were collected in the bulk of the specimens after 28 days for each curing type and sieved ( $80 \mu\text{m}$  mesh size) before being analyzed in order to remove sand particles for mortars and plant particles for LRC/LHC.

Binder samples were previously dried at  $60^\circ\text{C}$  until constant mass to remove excess free water. Then, thermal degradation was conducted from  $25^\circ\text{C}$  up to  $950^\circ\text{C}$  at  $10^\circ\text{C.min}^{-1}$  under air atmosphere with about 150 mg samples. The following weight losses were recorded:

- $100^\circ\text{C}$ – $400^\circ\text{C}$ : Loss of water from C–S–H hydrates [180]
- $200^\circ\text{C}$ – $300^\circ\text{C}$ : Decomposition of carbohydrate polysaccharides [185].

- 400°C–550°C: Dehydroxylation of  $\text{Ca(OH)}_2$
- 650°C–900°C: Decarbonation of  $\text{CaCO}_3$

$\text{Ca(OH)}_2$  and  $\text{CaCO}_3$  contents were determined by Eq. 5-1 and Eq. 5-2:

$$\text{Ca(OH)}_2(\%) = \text{LH}_2\text{O}(\%) \times K_1 \quad (\text{Eq. 5-1})$$

$$\text{CaCO}_3(\%) = \text{LCO}_2(\%) \times K_2 \quad (\text{Eq. 5-2})$$

Where  $\text{LH}_2\text{O}(\%)$  is the loss of water between 400°C and 550°C,  $\text{LCO}_2(\%)$  is the loss of carbon dioxide between 650°C and 850°C,  $K_1$  and  $K_2$  are the molar masses ( $M_w$ ) quotients,  $K_1 = M_w[\text{Ca(OH)}_2]/M_w(\text{H}_2\text{O})$  and  $K_2 = M_w(\text{CaCO}_3)/M_w(\text{CO}_2)$ .

The carbonation rate was calculated according to Eq. 5-3:

$$\text{Carbonation rate}(\%) = \frac{\%(\text{Newly formed CC}) \times K_3}{\%(\text{CH}_{\text{In}})} \times 100 \quad (\text{Eq. 5-3})$$

Where  $\%(\text{Newly formed CC})$  is the difference between the initial content of unburnt  $\text{CaCO}_3$  and the  $\text{CaCO}_3$  content after 28 days,  $\%(\text{CH}_{\text{In}})$  is the initial content of  $\text{Ca(OH)}_2$  present in unhydrated lime and  $K_3 = M_w(\text{CH})/M_w(\text{CC})$  with  $\text{CH} = \text{Ca(OH)}_2$  and  $\text{CC} = \text{CaCO}_3$ .

## II. 6. SEM polished cross section of lime mortars

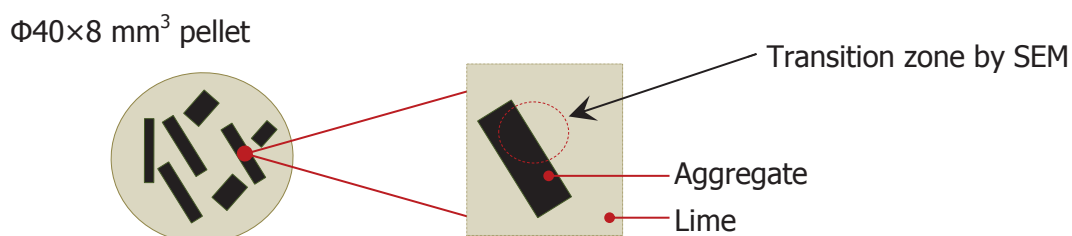
Back-Scattered Electron images (BSE-SEM) were acquired from polished cross sections of NHL3.5 mortars to investigate the hydration rate by analyzing C-S-H reaction rims around unhydrated  $\text{C}_2\text{S}$  grains. A standard sample (28d-ISC) was compared to a thermally activated one (7d-TA).

## II. 7. SEM observations of the transition zone between plant aggregates and lime

In order to characterize the transition zone around plant aggregates depending on curing conditions, lime-based paste pellets were cast with the mixture used for plant-based concrete manufacturing (NHL3.5 and CL90-S at 50/50 wt.%).

Plant aggregates were first prewetted by introducing them in water for 5 minutes. Then, about 10 particles were introduced in freshly mixed pellets without submerging them in lime and pellets were covered for 48 hours.

After demoulding, pellets were cured either under standard conditions (ISC) until 14 days or under moist conditions (MC: 20°C – 95%RH) and thermal activation (TA: 50°C – 95%RH) during 10 days and under standard conditions until 14 days. SEM observations of pellets were done after 14 days of curing in every case (Figure 5-2).



**Figure 5-2.** SEM observation of the transition zone between aggregates and lime in pellets

### III. Results and discussion

#### III. 1. Effect of the Lime-Water Treatment (LWT)

##### III. 1. 1. Mechanical properties of plant-based concretes

Compressive strength and average cycle modulus of plant-based concretes designed with raw or  $\text{Ca(OH)}_2$ -treated aggregates are reported in Table 5-6.

**Table 5-6.** Mechanical characteristics of concretes designed with Raw (R) or  $\text{Ca(OH)}_2$ -treated aggregates (LWT) after 1 month

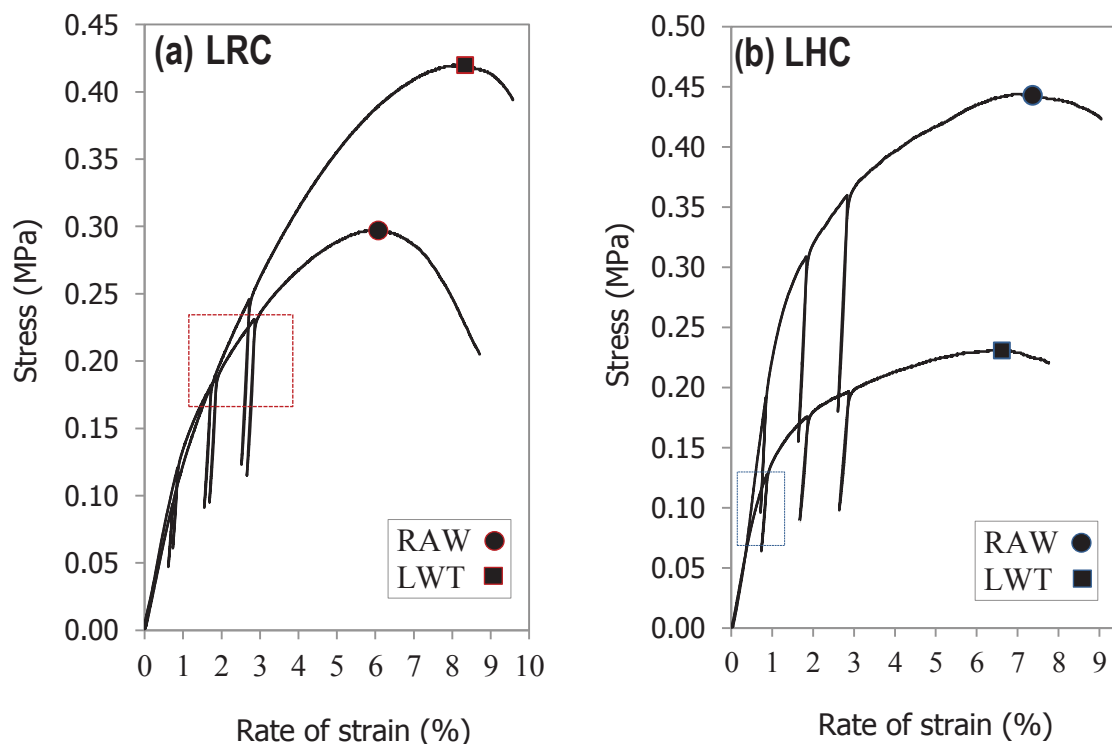
|                                     | Concrete | R               | LWT             |
|-------------------------------------|----------|-----------------|-----------------|
| Bulk density ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) | LRC      | $625 \pm 2$     | $648 \pm 1$     |
|                                     | LHC      | $454 \pm 5$     | $469 \pm 1$     |
| Compressive strength (MPa)          | LRC      | $0.28 \pm 0.03$ | $0.42 \pm 0.02$ |
|                                     | LHC      | $0.44 \pm 0.02$ | $0.22 \pm 0.01$ |
| Average cycle modulus (MPa)         | LRC      | $50 \pm 4$      | $50 \pm 2$      |
|                                     | LHC      | $73 \pm 2$      | $42 \pm 1$      |

In the case of LRC, concretes exhibit a higher compressive strength when  $\text{Ca(OH)}_2$ -treated rice husks are used. It is worth noting that LRC reaches the same compressive strength than LHC designed with raw hemp hurds thanks to the lime-water treatment.



However, the average cycle modulus remains unchanged. The stress-strain curve of LRC is reported in Figure 5-3a. As explained by Arnaud & Gourlay [25], during the phase corresponding to the quasi-elastic linear part of the curve, the binder matrix fully supports compressive stresses. In the second part, the behavior becomes elastoplastic and interfaces between the binder and the aggregates are progressively damaged until the load is largely transferred to the plant aggregates. The comparison of the stress-strain curves for raw and  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated rice husks suggests that the improvement of the compressive strength of LRC is due to a better adhesion with the binder. The improvement of supported stresses occurs after 2% strain (indicated in the dotted box). Under major deformations, the stress keeps going up without reaching failure because of the compaction ability of husks. Consequently, one might think that the lime-water treatment has increased their stiffness.

In the case of LHC (Figure 5-3b), mechanical performances sharply decrease after treatment. This result has been found by Nozahic and Številová et al. [10], [123] on hemp concretes with  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated aggregates and different mineral binders. The stress-strain curve of LHC with treated aggregates shows that supported stresses begin to decrease for a relatively low strain level ( $\sim 0.5\%$ ).



**Figure 5-3.** Stress-Strain curves during compression test of plant-based concrete specimens after 1 month – (a) LRC (b) LHC

### III. 1. 2. Chemical and textural modification of plant aggregates

#### III. 1. 2. 1 FTIR spectroscopy of raw and Ca(OH)<sub>2</sub>-treated aggregates

Table 5-7 shows the major bands observed in FTIR spectra of rice husk and hemp hurd and their assigned chemical group vibrations.

**Table 5-7.** Vibrations of functional groups present in rice husk and hemp hurds

| Wavenumber (cm <sup>-1</sup> ) | Vibration                                  | Source                             |
|--------------------------------|--|------------------------------------|
| 3300                           | OH stretching                              | Polysaccharides [186]              |
| 2920 - 2850                    | CH, CH <sub>2</sub> symmetrical stretching | Waxes and fats [10]                |
| 1730                           | C=O unconjugated                           | Hemicelluloses, waxes [186], [187] |
| 1630-1650                      | OH   | Water [186]                        |
| 1600                           | C=C aromatic skeletal vibration            | Lignin [188]                       |
| 1505-1510                      | C=C stretching                             | Lignin [186], [188]                |
| 1450                           | C=C aromatic symmetrical stretching        | Lignin [189]                       |
| 1425                           | CH <sub>2</sub> symmetrical bending        | Hemicelluloses [186]               |
| 1370                           | In-plane CH bending                        | Polysaccharides [186]              |
| 1320                           | In-plane OH bending                        | Cellulose [189]                    |
| 1240                           | C–O stretching (aryl group)                | Lignin [186]                       |
| 1160                           | C–O–C asymmetrical stretching              | Cellulose, hemicelluloses [186]    |
| 1100                           | Si–O–Si stretching                         | Silica [190]                       |
| 1030                           | C–C, C–OH, C–H rings                       | Cellulose, hemicelluloses [191]    |
| 895                            | Glycosidic bonds                           | Polysaccharides [186]              |
| 800                            | Stretching vibrations of Si–C bonds        | Silica [48]                        |
| 665                            | C–OH out-of-plane bending                  | Polysaccharides [191]              |

FTIR spectra of rice husks (convex surface and concave surface) and hemp hurds are displayed in Figure 5-4 & Figure 5-5. Modifications are observed in the range 600-3600 cm<sup>-1</sup>.

Spectra of treated aggregates show a significant change in the range 1300-1600 cm<sup>-1</sup> due to the appearance of the characteristic peak of calcite at 1414 cm<sup>-1</sup> (asymmetric stretching of CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>). This peak is associated with that at 875 cm<sup>-1</sup> [10], highlighting a deposit of lime particles on aggregate surface.

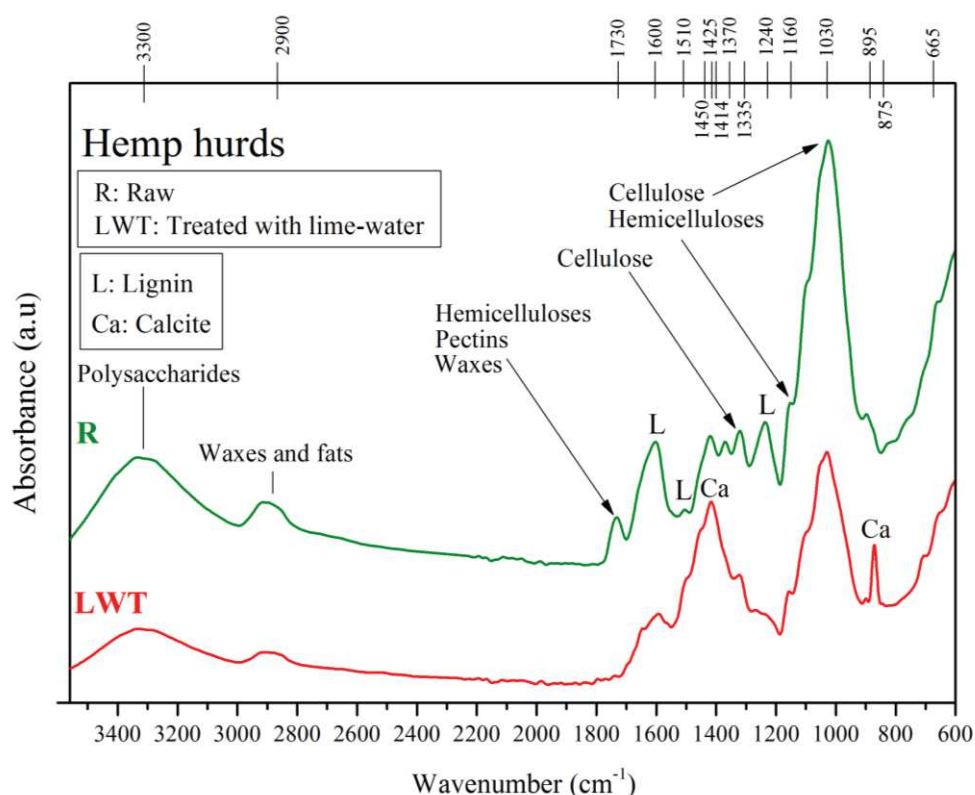
The disappearance of the peak centered at 1730 cm<sup>-1</sup> is clearly observed for treated hemp hurds (Figure 5-4). It is assigned to the C=O unconjugated stretching vibration of acetyl groups in the xylan components of hemicelluloses [186] but also related to carbonyl groups indicating the presence of cell wall pectin, wax or natural fats [10], [187]. This peak is accompanied by the decrease in the intensity of the peak located at 1030 cm<sup>-1</sup>. Moreover, the decreasing amplitude of the broad bands around 3300 cm<sup>-1</sup> and 2900 cm<sup>-1</sup> accompanied by the disappearance of peaks located at 1370 cm<sup>-1</sup> and 895 cm<sup>-1</sup> is noted. These modifications show that amorphous components such as hemicelluloses, pectins and waxes

are partially removed during the treatment which is quite successful in solubilizing removable polysaccharides.

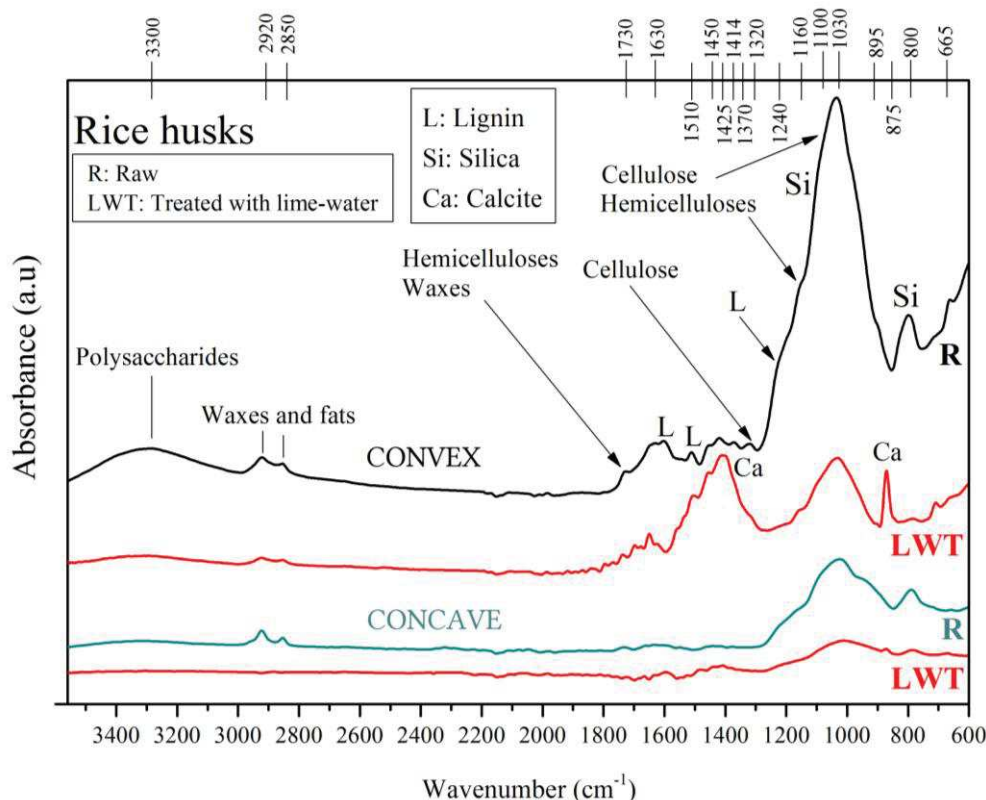
As regards rice husks, waxes and fats of the concave surface are totally removed (Figure 5-5). They are also partially removed on the convex surface but it is much more difficult to analyze the zone around  $1700\text{ cm}^{-1}$ . Moreover, the peaks located at  $1030\text{ cm}^{-1}$  and  $1160\text{ cm}^{-1}$  interfere with the characteristic peak of silica at  $1100\text{ cm}^{-1}$ .

Lignin-associated absorbances are difficult to analyze, especially the peak at  $1600\text{ cm}^{-1}$  which gives rise to confusion with water and the weak peak at  $1510\text{ cm}^{-1}$ . However, the absorbance at  $1240\text{ cm}^{-1}$  as a peak for hemp hurd and a broad shoulder for the convex surface of rice husk is almost invisible after treatment. This suggests that lignin is partially removed for both aggregates, in particular in the case of hemp hurds.

For rice husks, the broad band in the range  $900\text{--}1200\text{ cm}^{-1}$  is attributed to cellulosic compounds (cellulose, hemicelluloses) but also silica. The strong decrease in the intensity of this band is probably due to the removal of hemicelluloses but also amorphous silica. Indeed, this is confirmed by the near-disappearance of the peak located at  $800\text{ cm}^{-1}$  which corresponds to the stretching vibrations of Si-C bonds. Consequently, from FTIR investigations, it can be argued that rice husk silica is partially solubilized by the lime-water treatment.



**Figure 5-4.** FTIR spectra of raw and treated hemp hurds

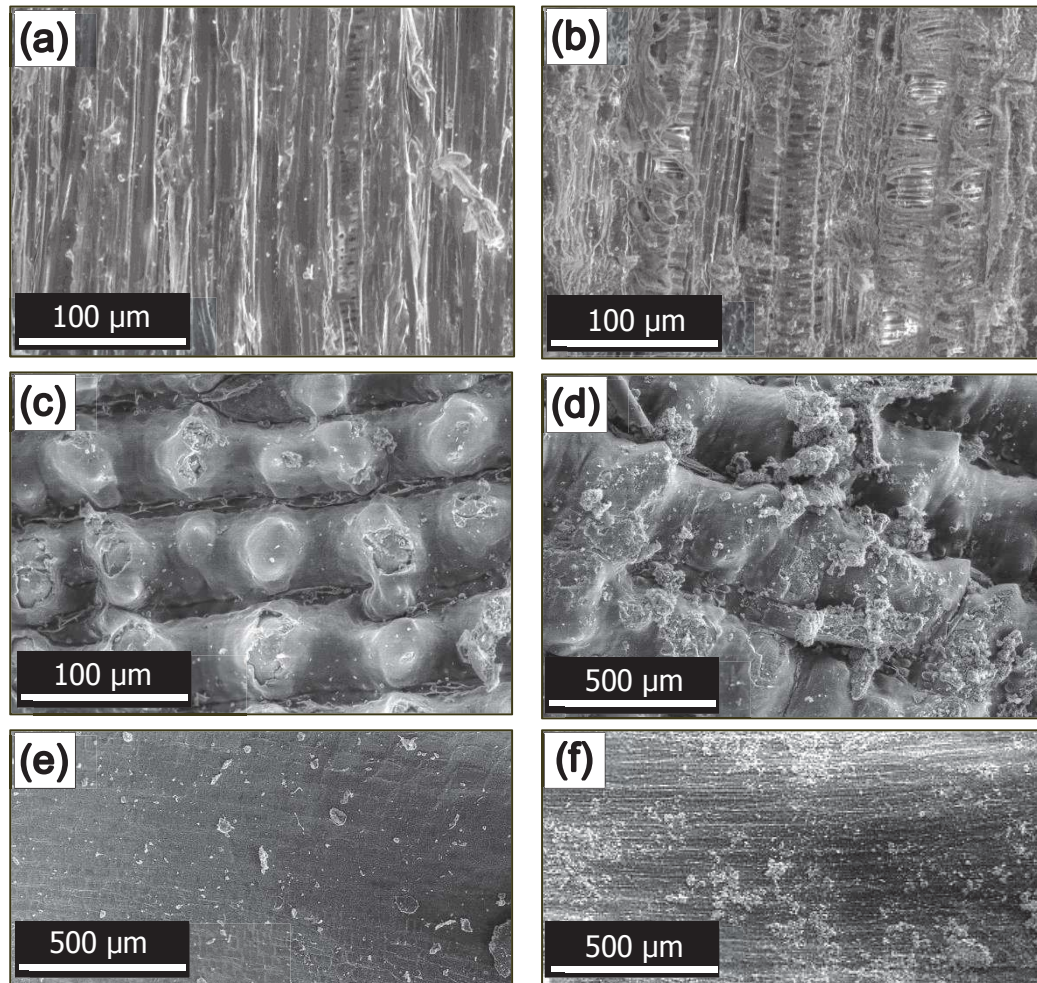


**Figure 5-5.** FTIR spectra of raw and treated rice husks for convex and concave surfaces

### III. 1. 2. 2 Surface morphology by SEM

Figure 5-6 shows surfaces of a raw hemp hurd particle (Figure 5-6a) and  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated particle (Figure 5-6b). Longitudinally oriented xylem vessels are observed for the raw particle for which the surface is relatively smooth with waxes, oil and impurities. After treatment, tracheids and vessels with scalariform structures are recognized. They correspond to the thick lignified secondary wall of xylem which is arranged as spiral bands of lignin [192]. Xylem vessels are indeed thick-walled tubes consisting of a polysaccharide-rich primary wall surrounding a lignified secondary cell wall. From these observations, it seems obvious that the primary wall, which mainly consists of cellulose, hemicelluloses and pectins [193], is largely removed by the treatment. Therefore, the leaching of amorphous polysaccharides reveals the secondary walls of xylem vessels deposited as spirals and rings. Figure 5-6c shows the convex surface of a raw rice husk and its well-known morphology with linear ridges and furrows punctuated with conical protrusions. Changes in surface texture after treatment (Figure 5-6d) are difficult to assess. However, calcium carbonate deposits are clearly identified on the surface. Concerning the concave surface, the treatment has strongly modified the roughness (Figure 5-6f) compared to the smooth surface of raw rice husk (Figure 5-6e). This is attributed to the removal of impurities, waxes, natural fats and polysaccharides largely present on this surface. Calcium carbonate deposits are also visible.





**Figure 5-6.** SEM pictures of aggregate surface. Hemp hurd: (a) Raw (b) Treated – Rice husk convex surface: (c) Raw (d) Treated – Rice husk concave surface: (e) Raw (f) Treated

Tissue organization of rice husks was investigated by Park et al. [137]. The outer convex surface consists of a highly thick and heavily silicified epidermis over underlying layers of lignified fibers. Internal tissues correspond to vascular bundles and parenchyma cells which are not lignified. According to some authors [144], [187], [190], the outer layer of silica is covered and combined with carbohydrate polysaccharides. In addition to free amorphous silica, a part of organosilicon compounds would be in combination with cellulosic ones. Moreover, a part of these components can be easily removable by alkali treatment and even a small fraction of silicon is water soluble [194]. From these literature statements and results from FTIR, it can be argued that the outer silicon-cellulose membrane on the convex surface was partially disintegrated after treatment. This chemical degradation may have caused an increase in husk stiffness. Furthermore, the presence of impurities, waxes and fats especially on the concave face of rice husks can affect chemical bonding with the binder. By removing these amorphous components, the treatment is likely to reveal reactive sites for adhesion (–OH groups). The higher roughness of the concave surface is another positive effect of the

treatment since it can improve mechanical interlocking and adhesion. As the outer layer of rice husk is covered with waxes, protective pectin (middle lamella), silica and lignin, it is hydrophobic compared to hemp hurd and other woody lignocellulosic particles. Indeed, the protective layer of rice husk combining silica and waxes forms a highly impermeable barrier. Hence, the removal of lignin and waxes can increase hydrophilicity [195]. This is confirmed by the slight increase of water absorption by rice husks in the first few minutes of immersion (Table 5-1). Consequently, a greater surface wettability of husks can be inferred as a possible explanation for the improvement of bonding strength between lime and aggregates.

As regards hemp hurd aggregates, FTIR and SEM investigations reveal that pectins, part of hemicelluloses and lignin were efficiently solubilized. One could have expected that chemical bonding between particles and lime matrix would have been then strengthened. Obviously, it is not the case in view of the sharp decrease of LHC compressive strength. Nozahic has shown that bonding strength was improved when hemp hurds are  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ -treated. However, as in the present study, compressive strength has been halved. Results highlight a possible structural alteration of lignin and a strong disintegration of the primary cell wall. The extent of surface degradation seems to be more important for hemp hurds than for rice husks. Vascular bundles of rice husks are protected by outer thick layers of silica and carbohydrates which are partly solubilized during the treatment. On the contrary, it is assumed that hemp hurds have suffered from a possible delignification of bundles and partial decrystallization of cellulose. Even if spiral bands of lignin are visible on Figure 5-6b, their partial alteration can be damaging as lignin acts as a binder preserving the bundles.

## **III. 2. Effect of moist curing and elevated temperature**

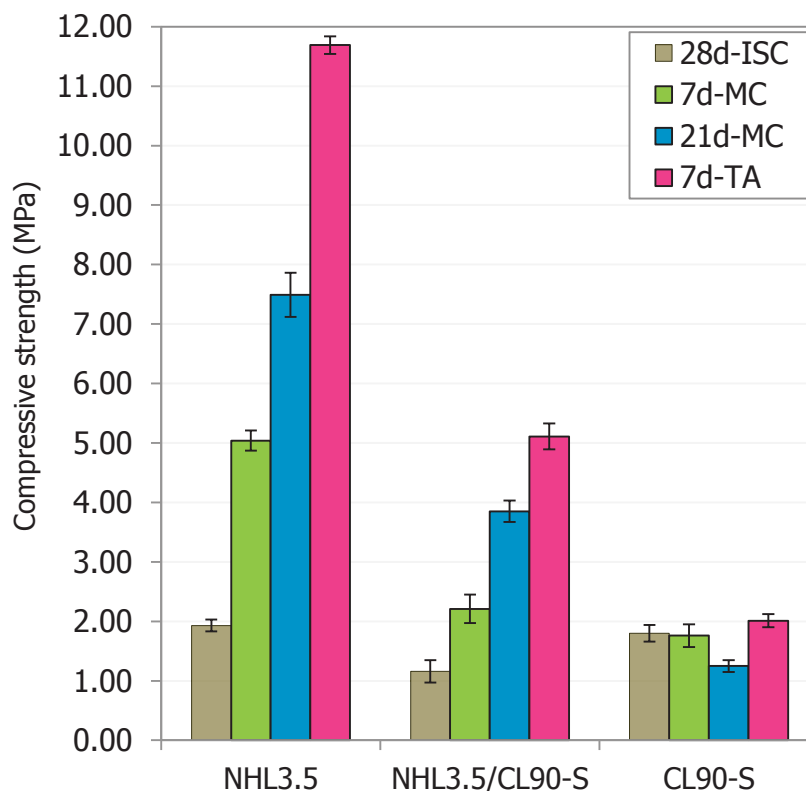
### **III. 2. 1. Lime mortars**

#### **III. 2. 1. 1 Compressive strength**

Figure 5-7 shows compressive strength of lime mortars after 28 days and cured under different environments.

For lime mortars including hydraulic phases (NHL3.5 and NHL3.5/CL90-S), the lowest compressive strength is achieved for samples cured 28 days under ISC just after demoulding. By contrast, initial moist curing (7d-MC) leads to a higher compressive strength. This latter is 2.6 times higher than that reached after 28 days under ISC for NHL3.5 mortars. The increase is more significant for the extended moist curing (21d-MC) for which compressive strength is 7.5 MPa for NHL3.5 mortars. Results are in accordance with NF EN 459-1 standard indicating that compressive strength of NHL3.5 mortars after 28 days ranges

from 3.5 to 10 MPa for mortars prepared with a binder-to-sand mass ratio of 3 and cured at 20°C and over 90%RH (moist curing) [67]. Curing hydraulic lime mortars in high humidity conditions (>90%RH) during 28 days has been investigated by some authors [94], [98], [99] and compared to laboratorial controlled curing at 20°C and about 65%RH. They came to the conclusion that high RH favors compressive strength of NHL mortars by increasing their hydration degree. ISC (dry conditions) are assumed to slow down hydration reactions due to a strong lack of water whereas moist conditions (MC) promote them [97]. Moreover, the results of the present study particularly stress the effect of the initial curing (i.e. in the first few days) on the strength development of lime-based materials including hydraulic phases. Samples cured under moist conditions and 50°C during 7 days (7d-TA) exhibit the highest compressive strength after 28 days. The effect of elevated temperature is highlighted by comparison of 7d-TA with 7d-MC samples. Compressive strength of thermally activated mortars is about 2.3 times higher than that reached under 7d-MC. It increased from 5 to 11.7 MPa for NHL3.5 mortars and from 2.2 to 5.1 MPa for NHL3.5/CL90-S mortars. This is attributed to the thermo-activation of C<sub>2</sub>S hydration which is very low at room temperature. An exposure of cementitious materials to high temperature at early age is known to strongly activate hydration reactions and leads to an accelerating of the compressive strength development [61].



**Figure 5-7.** Compressive strength of lime mortars cured under different environments after 28 days



As regards calcic lime mortars (CL90-S), compressive strength is almost not impacted by the curing regimes. Any significant increase in strength was expected since CL90-S does not contain calcium silicate phases. However, the hardening process of aerial calcic lime by carbonation is known to be influenced by relative humidity in the environment. When RH is very high, pores are saturated with water and air hardening by CO<sub>2</sub> diffusion through the mortar is almost impossible. Results show that curing CL90-S mortars during 7 days under moist conditions does not change compressive strength after 28 days. Only extended moist curing (21d-MC) leads to a slight decrease of strength, certainly due to a lower carbonation rate at 28 days. Pore saturation during 21 days gives priority to the transfers in liquid phase which are much slower than those in gas phase [25].

Bulk densities of lime mortars after 28 days of curing are reported in Table 5-8. An increase in bulk densities of mortars including hydraulic phases can be noted for moist curing at 20°C. This is attributed to the higher water consumption for C<sub>2</sub>S hydration. For mortars cured under elevated temperature, bulk density cannot be compared with that of specimens cured under 20°C as C-S-H water content is known to be different.

**Table 5-8.** Bulk densities (kg.m<sup>-3</sup>) of lime mortars before compression test (28 days)

| Mortar        | 28d-ISC  | 7d-MC     | 21d-MC    | 7d-TA    |
|---------------|----------|-----------|-----------|----------|
| NHL3.5        | 1934 ± 3 | 1957 ± 5  | 1988 ± 2  | 1989 ± 6 |
| NHL3.5/CL90-S | 1844 ± 3 | 1859 ± 15 | 1882 ± 14 | 1860 ± 2 |
| CL90-S        | 1753 ± 9 | 1750 ± 12 | 1738 ± 22 | 1746 ± 8 |

### III. 2. 1. 2 Binder hardening

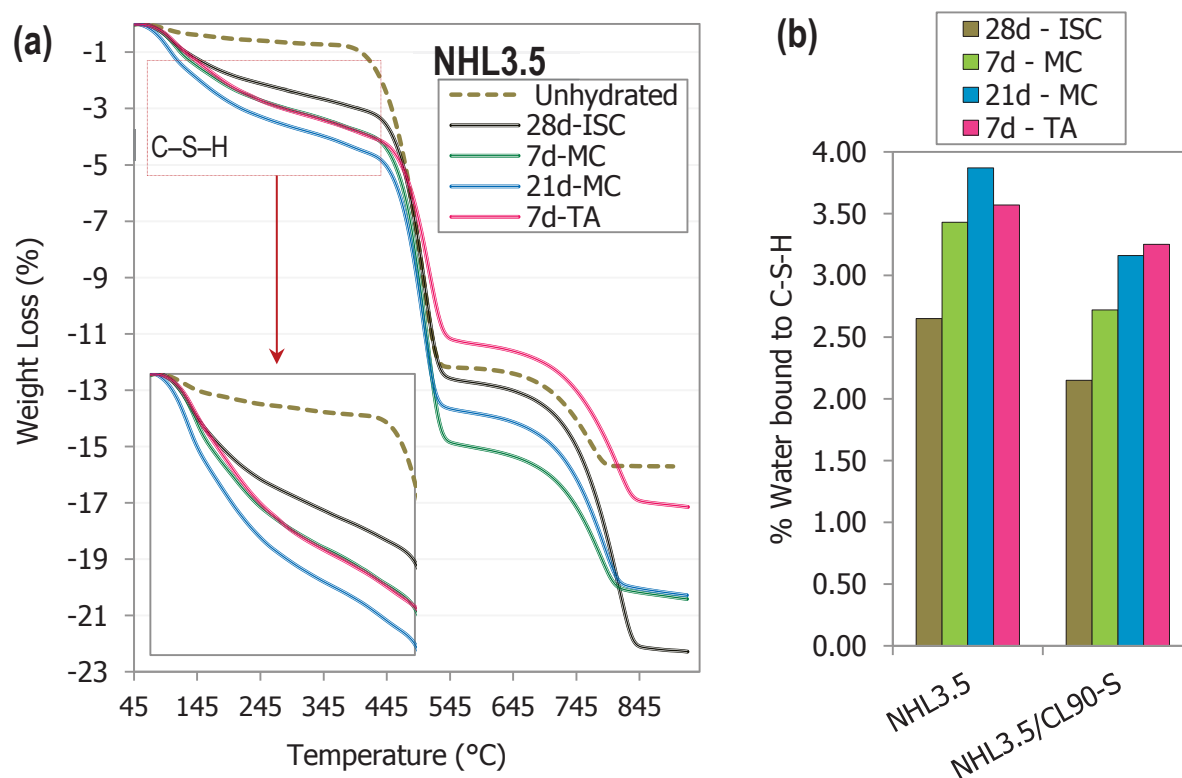
TGA curves of powdered matrix samples collected in the bulk of NHL3.5 mortars cured under different environments are given in Figure 5-8a.

Water bound to C-S-H can be determined through analyzing curves between 100°C and 400°C. Results are then reported in Figure 5-8b for mortars including hydraulic phases.

It can be first found that the C-S-H content of NHL3.5 mortars is fairly close to that of NHL3.5/CL90-S mortars while the amount of C<sub>2</sub>S in NHL3.5/CL90-S is logically two times lower. This result shows the strong influence of the water-to-binder mass ratio (W/B) on the hydration degree of C<sub>2</sub>S in accordance with the work of Xu et al. [180]. NHL3.5/CL90-S mortars are less rich in C<sub>2</sub>S but contain more water, thus giving a higher water-to-C<sub>2</sub>S ratio.

Figure 5-8a & Figure 5-8b show that water bound to C-S-H is higher for mortars subjected to moist curing (7d-MC and 21d-MC) than for mortars cured under standard conditions (28d-ISC). However, the C-S-H content of samples cured under high RH and elevated temperature (7d-TA) is not much higher than that of samples cured under high RH

and room temperature (7d–MC) (see Figure 5-8b). This is due to the lower water content of C–S–H formed at high temperature. According to many authors, when calcium silicate binders are cured under elevated temperature, C–S–H are crystallized in a different way with modified Ca/Si ratio. They also exhibit a significant decrease in water content and increase in density [61], [196], [197]. Consequently, water bound to C–S–H for mortars cured at 50°C cannot be compared with that of mortars cured at 20°C.



**Figure 5-8.** (a) TGA curves of powdered matrix samples collected in the bulk of NHL3.5 mortars after 28 days (b) %Water bound to C–S–H for NHL3.5 and NHL3.5/CL90-S mortars

Amounts of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  and  $\text{CaCO}_3$  are reported in Table 5-9 and carbonation rate is deduced. 28d–ISC samples are more carbonated than all other samples, which is not surprising since pore saturation with water during moist curing hinders carbonation and drying kinetics of prismatic mortars at 50%RH is relatively fast.

However, the amount of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  for 21d–MC and 7d–TA samples is very low compared to the amount of  $\text{CaCO}_3$  (Figure 5-8a & Table 5-9). Given the binder deposit in the bottom of curing enclosures, dissolution of the binder in wet conditions is assumed. Binder leaching in calcium-based materials is a well-known phenomenon when mortars are exposed to high humidity. Due to the very high porosity of lime mortars, condensed water ( $\text{RH} > 95\%$ ) may penetrate into the material, causing leaching of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ . Then, soluble components can migrate through the material to be repositied as efflorescence on external surfaces of

mortars and in the enclosure [150], [198], [199]. Forster et al. have well demonstrated that  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  is vulnerable to dissolution in uncarbonated hydraulic lime mortars [150]. With the same  $\text{CaCO}_3$  content than mortars cured under high RH and room temperature (7d–MC and 21d–MC), the amount of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  in mortars cured under elevated temperature is further reduced. The influence of temperature on  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  leaching is linked to its solubility product and to the diffusivity of  $\text{Ca}^{2+}$  throughout the mortar. Even if solubility of  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  declines as temperature increases [150], the increase in temperature can finally accelerate leaching due to a rising diffusivity of  $\text{Ca}^{2+}$  [200].

**Table 5-9.** Results from TGA performed in the bulk of mortars to characterize carbonation

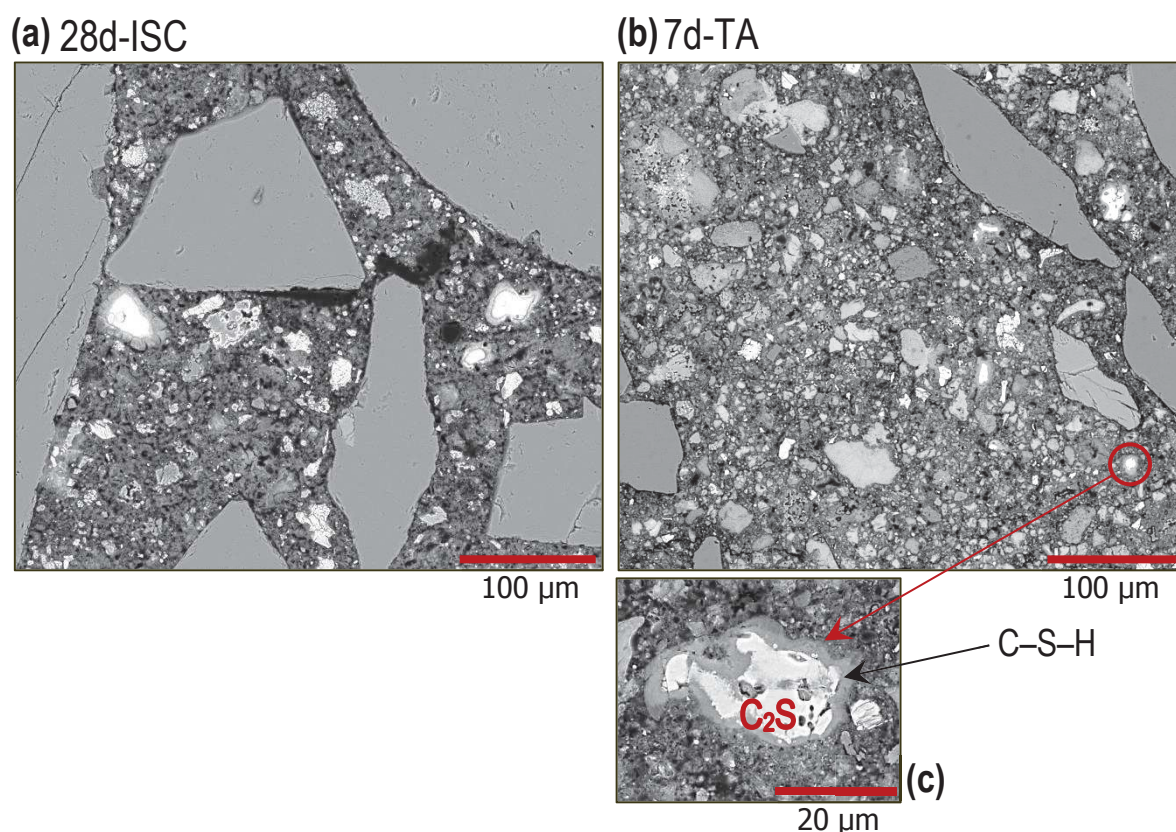
| Curing                       | UH*           | 28d–ISC | 7d–MC | 21d–MC | 7d–TA |
|------------------------------|---------------|---------|-------|--------|-------|
| Mortar                       | NHL3.5        |         |       |        |       |
| $\text{Ca}(\text{OH})_2$ (%) | 45            | 37      | 43.6  | 37     | 28.8  |
| $\text{CaCO}_3$ (%)          | 8.5           | 19.3    | 10.5  | 12     | 11.4  |
| Carbonation rate (%)         | –             | 17.8    | 3.1   | 5.8    | 4.8   |
| Mortar                       | NHL3.5/CL90-S |         |       |        |       |
| $\text{Ca}(\text{OH})_2$ (%) | 65            | 58      | 61.5  | 56     | 51.5  |
| $\text{CaCO}_3$ (%)          | 8.5           | 16      | 11.5  | 13     | 14    |
| Carbonation rate (%)         | –             | 10.8    | 5.4   | 5.1    | 6.3   |

\* Unhydrated lime

BSE-SEM images of NHL3.5 mortars in polished cross sections are represented in Figure 5-9 for 28d–ISC and 7d–TA samples.

A number of unhydrated cores of  $\text{C}_2\text{S}$  grains (white in BSE) surrounded by C–S–H rims (light grey) can be observed for 28d–ISC mortars (Figure 5-9a). However, it becomes harder to find unhydrated  $\text{C}_2\text{S}$  for 7d–TA mortars (Figure 5-9b). This means that remaining unhydrated  $\text{C}_2\text{S}$  are very small, due to an acceleration of their hydration kinetics by thermo-activation leading to thicker C–S–H rims (higher hydration degree). Furthermore, 7d–TA samples seem to be characterized by a denser microstructure. Some unhydrated cores with their hydration rim can be observed with a higher magnification (Figure 5-9c).

In NHL-based mortars, strength contribution of  $\text{C}_2\text{S}$  is considered as practically negligible before 28 days [95]. This is the case if mortars are cured at 20°C and 50%RH (ISC) just after demoulding. However, high relative humidity (95%RH) and elevated temperature (50°C) favor  $\text{C}_2\text{S}$  hydration and therefore increase compressive strength.



**Figure 5-9.** BSE-SEM images of polished cross sections of NHL3.5 mortars after 28 days. (a) 28d-ISC mortar, (b) 7d-TA mortar, (c)  $C_2S$  grain with C-S-H rim in 7d-TA mortar

### III. 2. 2. Plant-based concretes

#### III. 2. 2. 1 Mechanical properties

Dry bulk densities of plant-based concretes designed with the mixture NHL3.5/CL90-S are reported in Table 5-10 on an indicative basis.

**Table 5-10.** Average bulk densities of plant-based concretes after 28 days

|                                     | LRC          | LHC          |
|-------------------------------------|--------------|--------------|
| Bulk density ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) | $641 \pm 13$ | $456 \pm 12$ |

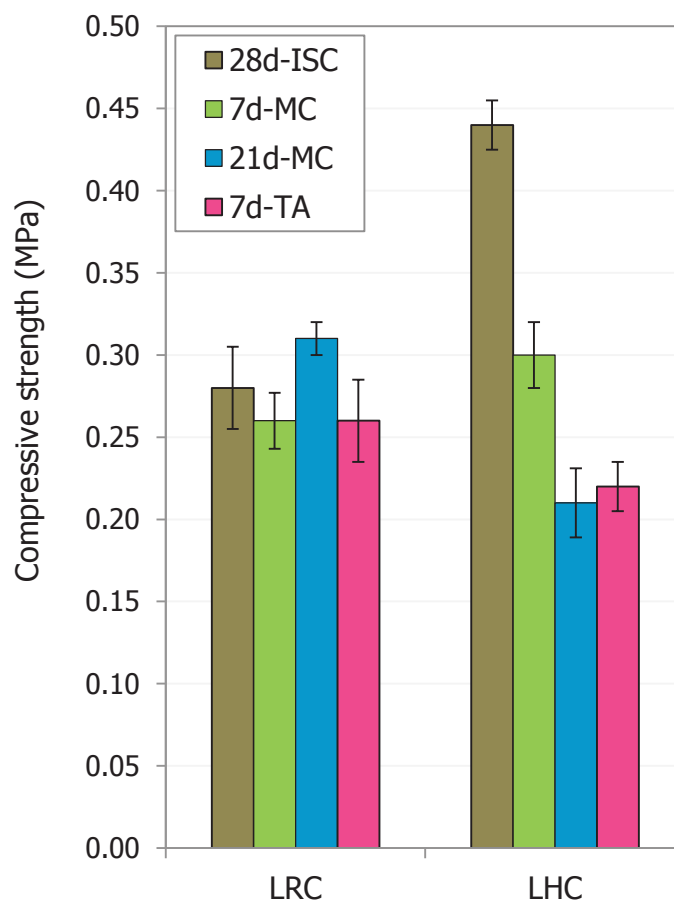
Results from compression tests are reported in Figure 5-10 for compressive strength and Table 5-11 for average cycle modulus.

Compressive strength of LRC remains almost the same regardless of curing conditions and is around 0.28 MPa. Cycle moduli follow a similar trend with a slight decrease especially for 21d-MC samples. Compressive strength of LHC shows a significant decrease of 30% for

7d–MC samples and 50% for 21d–MC and 7d–TA samples if compared to standard curing (28d–ISC). The same observation can be made with cycle modulus of LHC which decreases by 25% for 7d–TA samples and 35% for 21d–MC samples.

For both concretes, results are completely different than those obtained for lime-based mortars. Mechanical characteristics even follow an opposite trend for LHC for which moist curing and elevated temperature have resulted in a dramatic fall of compressive strength. As regards hemp concrete (LHC), results are in accordance with the study of Arnaud and Gourlay [25]. These authors demonstrated that a humid environment (98%RH) slow down very sharply the setting of hemp concrete even when they are manufactured using hydraulic lime-based binders. In the present paper, it should be noted that LRC is less sensitive to curing conditions since mechanical characteristics can be considered as almost unchanged.

In view of these observations, influence of curing conditions on lime-based binder hardening and physico-chemical interaction between binder and plant aggregates need to be investigated. Compression test results lead one to believe that the interfacial transition zone (ITZ) is certainly strongly involved.



**Figure 5-10.** Compressive strength of plant-based concretes cured under different environments after 28 days

**Table 5-11.** Average cycle modulus ( $C_M$ ) of plant-based concretes cured under different environments after 28 days

| Concrete          | 28d-ISC    | 7d-MC      | 21d-MC     | 7d-TA      |
|-------------------|------------|------------|------------|------------|
| $C_M$ - LRC (MPa) | $50 \pm 4$ | $49 \pm 2$ | $38 \pm 5$ | $46 \pm 2$ |
| $C_M$ - LHC (MPa) | $73 \pm 2$ | $68 \pm 2$ | $48 \pm 3$ | $57 \pm 3$ |

### III. 2. 2. 2 Binder hardening by carbonation

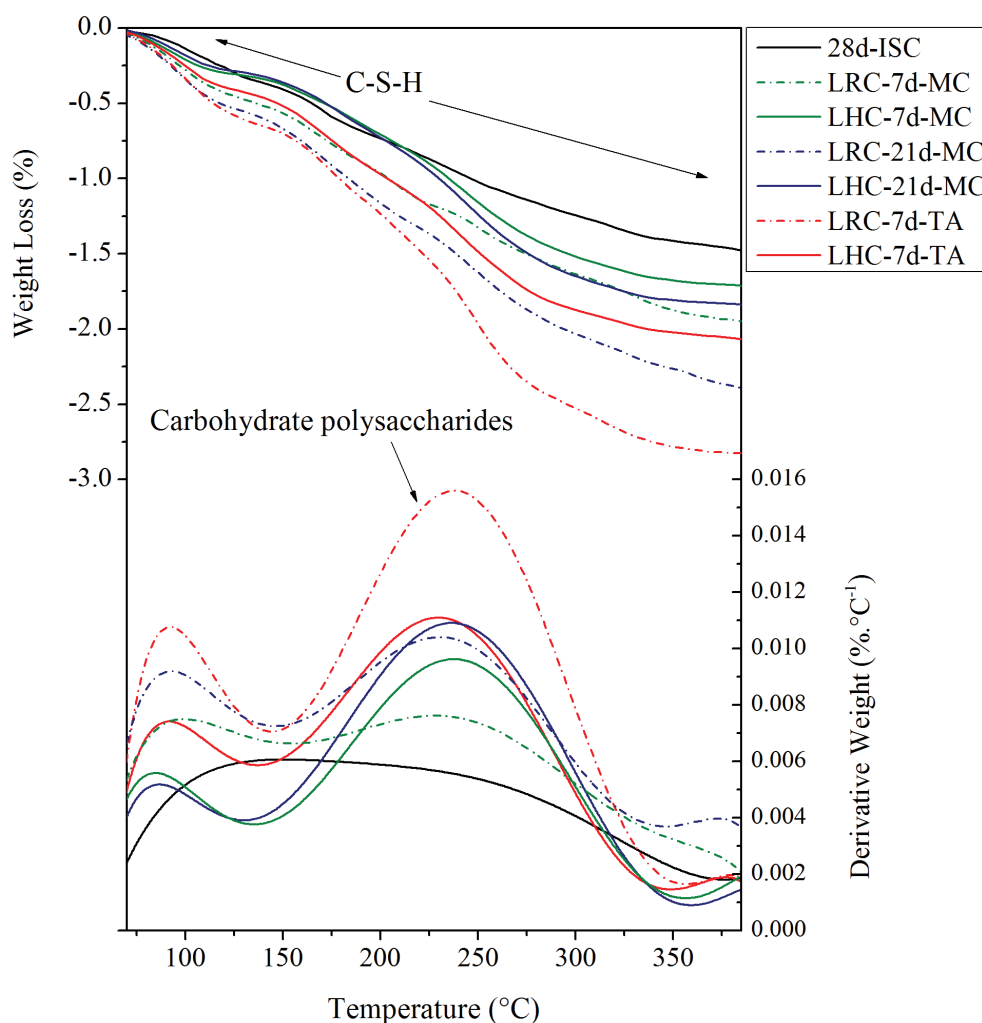
Arnaud and Gourlay [25] explained in part the decrease of the compressive strength of hemp concrete under moist conditions by the water-blocking of pores thus limiting  $\text{CO}_2$  diffusion and carbonation. However, the average carbonation rate in the bulk of plant-based concretes in the present study is about 13% regardless of curing conditions (21d-MC being the closest conditions to those considered by Arnaud & Gourlay). In fact, drying time of plant-based concretes is a little less than 1 month [168], [182]. A previous study has shown that  $\text{CO}_2$  diffusion in the bulk of plant-based concrete specimens can only occur beyond 15 days [182]. Consequently, carbonation rate before 28 days is low in every case and mainly due to carbonic acid transfer in liquid phase. The beginning of air hardening will be probably delayed after 28 days for concretes cured under moist conditions but this does not change the carbonation rate after 28 days. As a conclusion, compressive strength of plant-based concretes cured under MC/TA cannot be linked to the delay in aerial carbonation at day 28.

### III. 2. 2. 3 Binder hardening by hydration

As for lime-based mortars, the continuous weight loss between 100°C and 400°C on TG curves is attributed to the water bound to C-S-H. TG curves (weight loss and derivative) of powdered bulk samples are reported in Figure 5-11 in order to characterize hydration.

The decomposition range between about 200°C and 300°C is typical of some carbohydrate polysaccharides [185], [201], [202]. The peak obtained around 230°C on the derivative weight curve is therefore mostly attributed to the decomposition of cellulosic amorphous components such as hemicelluloses (xylan). These plant-derived polysaccharides are associated with cellulose and lignin in cell walls and are known to be easily extracted in an aqueous alkaline medium [120], [165], [166]. Water soluble sugars, hemicelluloses and lignin have a negative impact on the setting of cementitious materials by disrupting C-S-H growth [35], [203].





**Figure 5-11.** TG/DTG curves of bulk samples collected in plant-based concretes after 28 days depending on curing conditions (LHC and LRC are represented by the same curve for 28d-ISC)

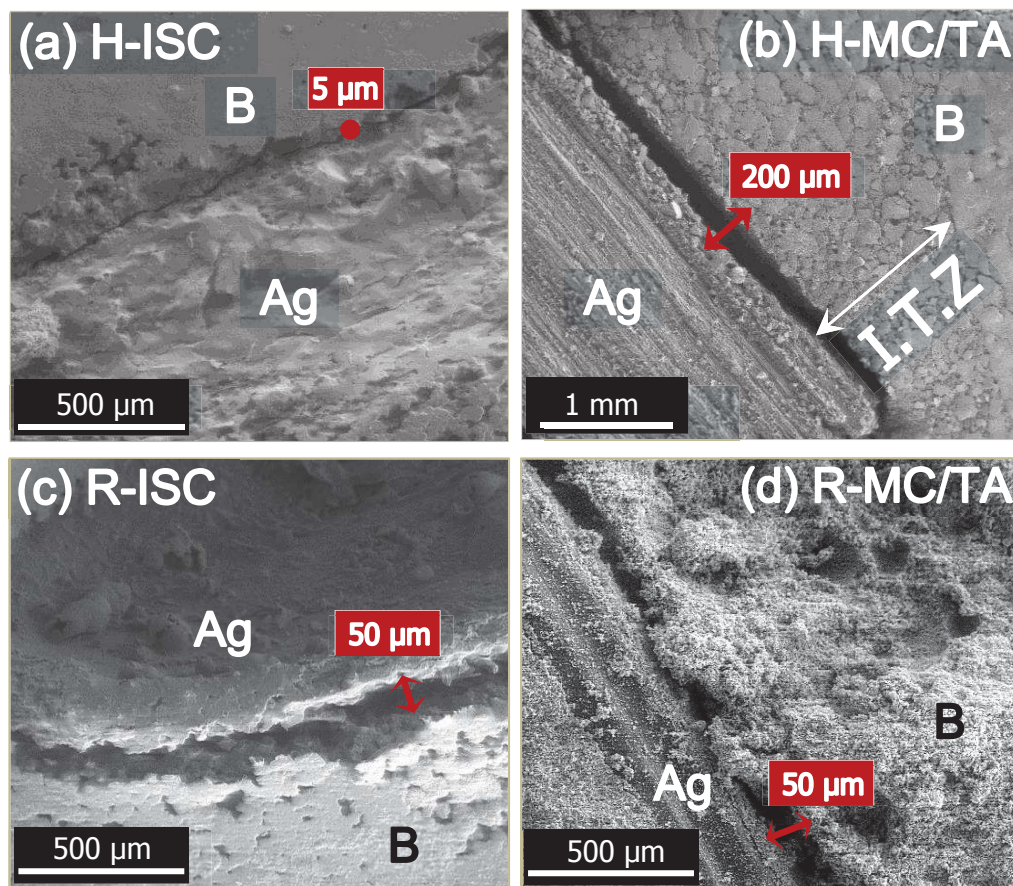
It is first observed (Figure 5-11) that both moist-cured and thermally activated samples are characterized by a stronger weight loss peak in the range 200°C–300°C, compared to standard ones (28d-ISC). Therefore, it can be concluded that moist curing and elevated temperature lead to a higher extraction of carbohydrate polysaccharides from plant aggregates towards lime binder. This sugar leaching is probably responsible for the formation of a non-hydrated/non-solidified halo around plant particles observed in some studies [10], [35]. Under moist curing (MC), this can be explained by the water-soaked state in which plant aggregates remain during the curing period. This probably leads to a stronger decomposition of xylans which are easily removable in alkaline pore water. For LRC, elevated temperature (TA) has worsened the leaching effect (Figure 5-11). For this curing, plant aggregates are actually in contact with an interstitial medium which can be seen as hot water. This latter has a great chance to activate the degradation of some cellulosic compounds in plant particles.



In the temperature range 100°C–200°C which does not interfere with the decomposition of polysaccharides, LHC shows an equivalent weight loss for 7d–MC and 21d–MC samples compared to 28d–ISC. In contrast, weight loss of moist-cured samples is more pronounced than that of standard samples for LRC. This seems to be correlated with the weight loss of moist-cured samples between 200°C and 300°C which is higher for LHC (Figure 5-11). This trend shows that extracted cellulosic compounds from hemp hurds seem to have a bigger impact on binder hydration when concrete is cured under moist conditions. As for lime mortars, even if it is likely that elevated temperature negatively affects binder hydration at the lime–aggregate interface, the weight loss between 100°C and 200°C due to water bound to C–S–H cannot be compared with that achieved under room temperature.

#### III. 2. 2. 4 Transition zone between lime and aggregates

SEM pictures of aggregate-lime interfaces are reported in Figure 5-12 for ISC and MC/TA since similar results are obtained for moist-cured and thermally activated samples.



**Figure 5-12.** Lime-aggregate interfaces by SEM on pellets cured 14 days (a), (c) Curing under ISC (b), (d) Moist-cured or thermally activated pellets (a), (b) Hemp-Lime interface (c), (d) Rice husk-Lime interface

H: Hemp, R: Rice husk, B: Binder, Ag: Aggregate

As regards hemp-lime interface under ISC (Figure 5-12a), SEM picture shows a thin gap of about 5  $\mu\text{m}$  thick between the particle and the matrix. This debonding gap is regularly observed in vegetable fiber-cement composites and it could be linked to the desiccation shrinkage of plant aggregates upon drying [204], [205]. However, when hemp-lime pellets are moist-cured/thermally activated (Figure 5-12b), the gap zone turns into a gaping hole which is more than 200  $\mu\text{m}$  thick. The hemp particle is totally uncoupled from the binder, suggesting a strong lack of adhesion. Moreover, the particle is surrounded by a porous matrix. This affected zone can reach a considerable thickness (up to 2 mm). Both debonding gap and affected matrix surrounding aggregates correspond to the so-called interfacial transition zone (ITZ) [204]. This latter is obviously of poor quality when hemp-lime pellets are moist-cured/thermally activated. This result can be explained by capillary pressure and moisture transport between aggregates and lime, as explained in the work of Groot & Larbi [117] about the influence of water flow on bond strength development.

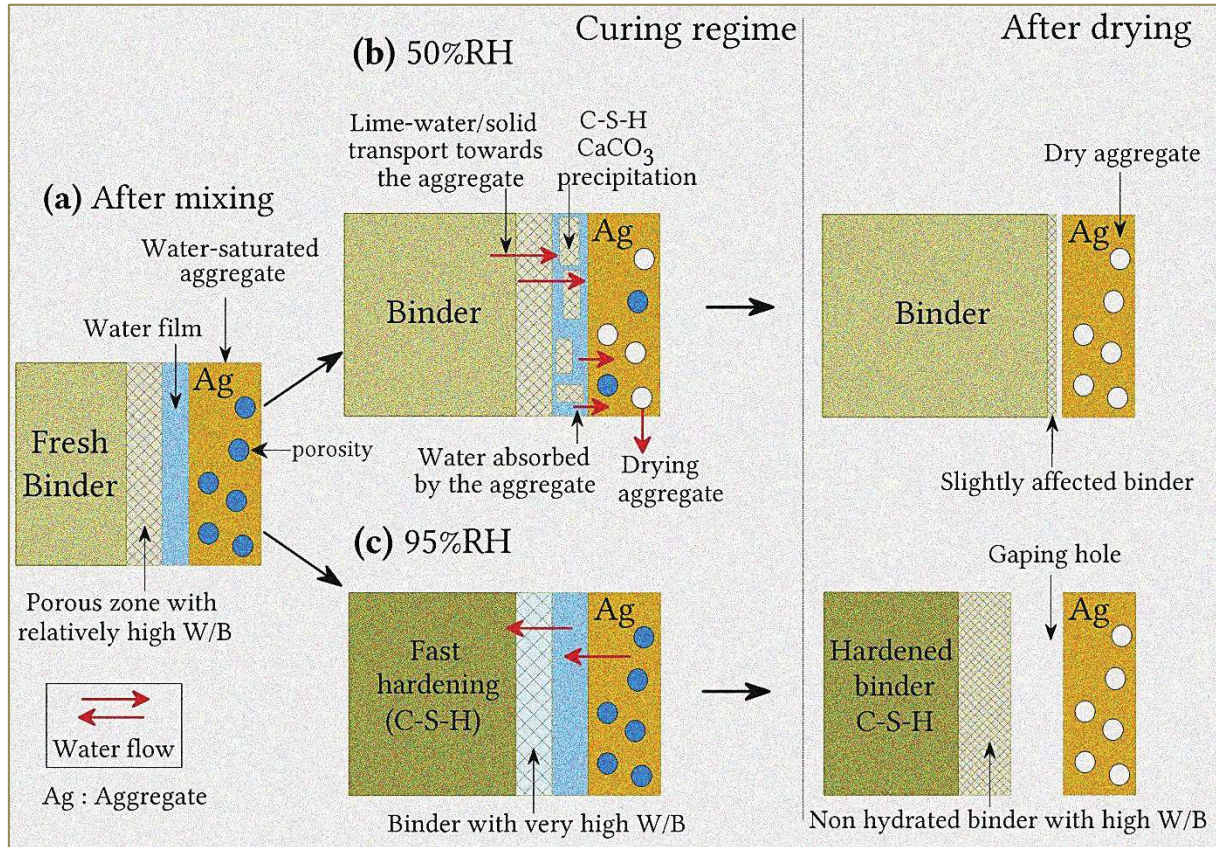
After mixing, the presence of a water film and a binder zone with a higher water content surrounding water-saturated plant aggregates is assumed (Figure 5-13a).

Under standard conditions (ISC: 20°C – 50%RH), wet aggregates begin to dry just after demoulding and a certain amount of water is transported into hurd channels by capillary absorption. As a result of initial flow rate from the binder to the aggregates, a physical transport of lime-water or solid particles towards the aggregate is assumed. These movements can result in precipitation of hydration products and  $\text{CaCO}_3$  near aggregate surface and even within the particle. Under ISC, we assume that the interfacial zone changes from a water-filled zone to a zone increasingly filled with solids and whose porosity reduces with time (Figure 5-13b) [206]. Arizzi et al. [149] reported a relatively good adhesion of hydraulic lime with the surface of hemp hurds after 3 months of curing under 75%RH and even the presence of C–S–H at the interface.

Under MC/TA (Figure 5-13c), hemp hurds remain water-saturated and hydration kinetics of the binder is faster than that under ISC. Partial hydration of the binder results in a finer pore structure and water consumption. As a consequence, water is probably squeezed out of hemp hurd channels by capillary pressure as these plant aggregates are characterized by coarse pores. This will inevitably lead to excess water around aggregates during all the curing period (7 days or 21 days). This remaining water film surrounding the aggregates involves a locally high W/B ratio in the ITZ and provides a higher porosity of the binder than in the bulk paste. According to some authors [207], [208], the higher W/B ratio in the weak zone directly adjacent to the aggregates is mainly linked to bleeding around them. This mechanism is even more significant that aggregates are relatively hydrophobic [10]. Under MC/TA, plant aggregate porosity is totally saturated and water absorption is non-existent. Accordingly, the result is the same as if aggregates were hydrophobic. After drying, the



water rich zone creates a gaping hole and the ITZ suffers from a strong lack of binder (Figure 5-12b and Figure 5-13c). These unfavorable bond conditions are clearly harmful to the mechanical properties of the final hemp concrete as exposed in Figure 5-10.



**Figure 5-13.** Schematic view of mechanisms involved in the influence of curing conditions on the interface between lime binder and hemp aggregates (a) After mixing (b) Under indoor standard conditions (20°C – 50%RH), (c) Under moist curing (20°C – 95%RH)

The mechanisms detailed in Figure 5-13 are relevant for hemp-lime interface. However, they are less suited considering rice husk as aggregates.

As regards transition zone between rice husk and lime, any significant differences were observed between ISC and MC/TA. In all cases, the debonding gap is about 50  $\mu\text{m}$  and the surrounding matrix is relatively affected (Figure 5-12c and Figure 5-12d). It is much more difficult to analyze the interface due to the complex geometry of rice husk with convex and concave surfaces. Nonetheless, it may be noted that ITZ properties not only depend on the W/B ratio in the vicinity of plant particles but also on surface texture and porosity of plant aggregates [208]. It is assumed that under ISC, adhesion between rice husk and lime was already of poorer quality compared to that between hemp hurd and lime (Figure 5-12c). This is probably due to the water-repellent and smooth cuticle of rice husk which is responsible

for a low surface wettability as suggested in conclusion of the effects of the lime-water treatment.

Furthermore, the greater swelling of hemp hurds compared to rice husks in presence of water can also explain the gaping hole observed in the transition zone between hemp hurds and lime.

## IV. Conclusion

The main findings of this study are the following:

- Using  $\text{Ca(OH)}_2$ -treated rice husks instead of raw ones resulted in a higher compressive strength for Lime and Rice husk Concrete (LRC). Thanks to the treatment, LRC reached the same compressive strength than that of Lime and Hemp Concrete (LHC) using raw hemp hurds. However, the mechanical behavior of LRC was only improved for a relatively high rate of strain. This improvement is probably linked to a better adhesion of rice husks with the binder (chemical bonding, roughness and surface wettability following the partial removal of the silicon-cellulose membrane) but also to an increase in their stiffness, making them more compatible with the lime-based binder.

- This study showed that mechanical performances of LHC have fallen when  $\text{Ca(OH)}_2$ -treated hemp hurds were used. The lime-water treatment was successful in solubilizing removable amorphous polysaccharides but it is assumed to be responsible for a strong disintegration of the primary cell wall. Hemp hurds seem to be less resistant to the alkaline leaching whereas vascular bundles of rice husks are more protected by external thick layers of silica. In this regard, it should be interesting to vary the time for which particles are treated in lime-water as it could be more or less adequate depending on the type of aggregate.

- Hydraulic lime-based mortars showed a great sensitivity to curing conditions. Moist curing (95%RH) led to a strong increase in the compressive strength of NHL-based mortars, even when they were subjected to high RH during the first few days after demoulding. After 28 days, compressive strength of NHL-based mortars exposed to high temperature (50°C) and moist curing during 7 days was about 5.5 times higher than that achieved for mortars cured at 20°C and 50%RH. Therefore, the hardening of the lime-based mortars can be significantly accelerated at early ages. Results showed that high relative humidity and elevated temperature promoted  $\text{C}_2\text{S}$  hydration.

- Curing LHC during 7 days in saturated humidity is enough to decrease compressive strength by 30% if compared to that achieved after 28 days of curing at 50%RH. This decrease is worsened if moist curing is extended until 21 days and for samples subjected to high temperature. This study showed that the interfacial transition zone was affected by

moist curing and elevated temperature, due to a strong leaching of polysaccharides and excess water in the vicinity of plant aggregates, especially in the case of LHC. LRC was less impacted by curing conditions exhibiting unchanged mechanical performances. The water-repellent and smooth cuticle of rice husk is probably responsible for a poor adhesion with the binder even for a curing at 20°C and 50%RH. This could justify the same mechanical properties achieved for LRC regardless of curing conditions.

## Acknowledgements

The authors are grateful to Christian Buisson, Marc Longerey, Issam El Bouzaidy and Med Karim Ammour for their help in the experimental work.

## Bilan du Chapitre

Ce chapitre concernait l'évaluation de l'effet d'un traitement des granulats à l'eau de chaux et de conditions de cure plus favorables aux réactions d'hydratation des  $C_2S$  sur les performances mécaniques en compression des agrobétons après 28 jours de cure.

Le traitement des granulats dans une eau de chaux saturée pendant 24 heures a eu un effet opposé sur la résistance mécanique des bétons selon qu'ils incorporent la chènevotte ou la balle de riz. En effet, ce traitement a mené à une chute des propriétés mécaniques du béton de chanvre. Ce résultat est assez inattendu bien qu'il ait déjà été observé par d'autres auteurs utilisant des liants minéraux différents [10], [123]. Cette étude a mis en évidence une très forte dégradation du granulat de chènevotte suite au traitement à l'eau de chaux qui aurait fortement détérioré la paroi primaire et probablement délignifié les faisceaux de la paroi secondaire qui assurent la cohésion et la rigidité intrinsèque à la particule. Dès lors que les efforts sont transférés du liant vers la particule, la valeur de contrainte chute et entraîne une résistance à la compression plus faible. A l'inverse, le traitement a amélioré la résistance en compression du béton à base de balles de riz. Cet effet est attribué à une plus grande rugosité de surface résultant de la suppression des polysaccharides solubles et amorphes et probablement à une meilleure mouillabilité de cette surface. La face convexe de la balle de riz, la plus propice à l'adhésion avec le liant, est en effet recouverte d'une cuticule de cire et d'une couche de silice combinée à des polysaccharides et de la lignine. Ces composés sont majoritairement hydrophobes et sont d'ailleurs responsables en partie de la plus faible affinité de la balle de riz avec l'eau (en plus de sa faible porosité). Les résultats ont mis en évidence une dissolution assez importante de la membrane silico-cellulosique pouvant être responsable d'une hydrophilie plus importante de la balle de riz. Cet effet pourrait ainsi entraîner une meilleure adhésion avec le liant à



base de chaux. De plus, il est possible que le traitement ait modifié la rigidité de la balle de riz compte tenu du niveau de contrainte élevé pour de très forts taux de déformation. La balle de riz a probablement été plus résistante à l'attaque alcaline engendrée par le traitement à l'eau de chaux en raison de la dissolution partielle de la couche protectrice silico-cellulosique tout en préservant la structure de la paroi végétale. Il serait intéressant de faire varier le temps de traitement des granulats.

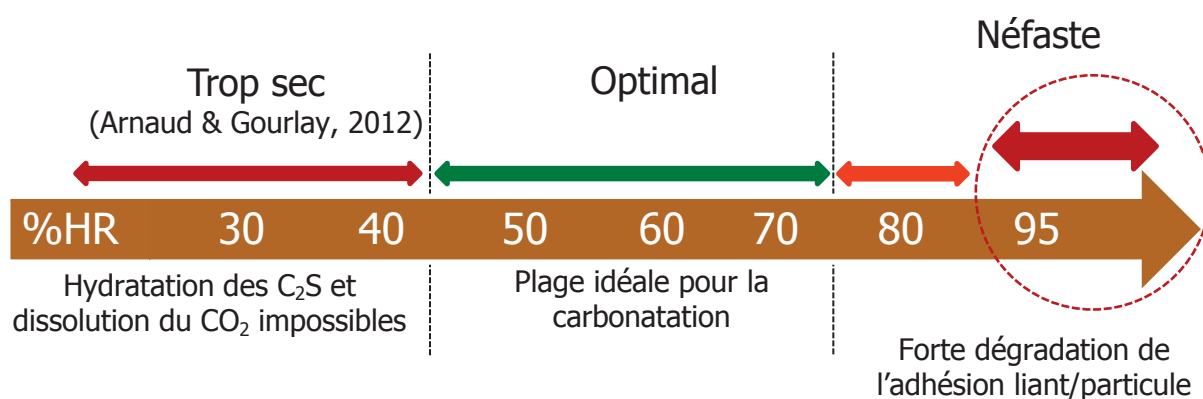
En définitive, le traitement à l'eau de chaux des balles de riz suivi d'une cure d'un mois en carbonatation accélérée offre une perspective intéressante pour obtenir un béton chaux/balles de riz ayant les mêmes performances mécaniques que le béton de chanvre dans le cadre d'éléments préfabriqués. En effet, le traitement à l'eau de chaux permet d'obtenir une résistance en compression initiale égale à  $\sim 0,45$  MPa qui peut être doublée par la cure en  $\text{CO}_2$  du béton. La résistance finale pourrait alors avoisiner 1 MPa comme c'est le cas pour le béton de chanvre suite à la cure en carbonatation accélérée.

Différentes conditions de cure ont été appliquées à des mortiers à base de chaux et aux bétons végétaux. Bien que l'humidité relative idéale pour la carbonatation des chaux soit de l'ordre de 65%HR, il a été démontré que la résistance en compression des mortiers de chaux hydraulique NHL3.5 est nettement supérieure lorsque la cure s'effectue à 95%HR. Ainsi, le développement important de C-S-H à court terme vient apporter une très forte contribution au durcissement et à la résistance mécanique des mortiers. Cela confirme que la cinétique d'hydratation des  $\text{C}_2\text{S}$  peut être fortement accélérée en ambiance humide. On a pu noter également que le développement de la résistance mécanique à court terme pour les mortiers à base du liant NHL3.5/CL90-S conserve une grande sensibilité à l'humidité relative malgré la faible proportion en  $\text{C}_2\text{S}$ . L'effet de la température élevée ( $50^\circ\text{C}$  – 95%HR) au jeune âge s'est révélé particulièrement remarquable sur les mortiers incorporant des phases  $\text{C}_2\text{S}$ . En définitive, la résistance en compression a été multipliée au moins par 5 comparée à celle des mortiers conservés à  $20^\circ\text{C}$  et 50%HR.

La transposition de ces conditions de cure sur les agrobétons n'a pas entraîné les mêmes résultats. Elle a engendré une chute des propriétés mécaniques pour le béton de chanvre et ces dernières sont restées inchangées pour le béton de balles de riz. L'étude a montré que ce sont notamment les interfaces liant-particule qui sont très sensibles aux conditions de conservation. La cure à 95%HR entraîne la persistance d'un film d'eau et d'une zone de liant très affecté autour du granulat, en particulier dans le cas de la chènevotte. Un mécanisme a ainsi été proposé pour le béton de chanvre. A 95%HR, la particule de chènevotte reste saturée et le liant durcit beaucoup plus vite pendant la période de cure (hydratation). Ainsi le dépôt d'eau de chaux et de particules solides vers la surface du granulat par absorption capillaire est impossible. Par conséquent, après le séchage, la zone de transition entre la chènevotte et le liant est caractérisée par un vide très important, ce qui rend l'adhésion

particulièrement médiocre. En ce qui concerne la balle de riz, celle-ci est déjà caractérisée par une adhésion avec le liant de moins bonne qualité à 50%HR, probablement en raison de son caractère plus hydrophobe que la chènevotte. L'effet de la cure à 95%HR est donc bien présent mais ne dégrade pas davantage l'interface chaux-balle de riz. La dégradation des propriétés mécaniques lors de la cure humide avec élévation de température est également liée à une extraction importante de polysaccharides dans le liant.

Ce chapitre permet de confirmer la plage d'humidité relative idéale pour la conservation des bétons végétaux à base de chaux hydraulique et aérienne (Figure 5-14). Elle correspond finalement à celle de la carbonatation. Une cure à humidité relative élevée dans l'objectif d'accélérer l'hydratation s'effectue au détriment de l'adhésion liant/particule.



**Figure 5-14.** Schéma récapitulatif à propos de l'influence des conditions de cure sur les performances mécaniques des bétons végétaux à base de chaux étudiés dans ce travail



# Conclusion générale et perspectives

Ce travail de thèse a permis de contribuer au développement d'un agrobéton innovant à base de balles de riz provenant directement d'un bassin rizicole local (Camargue). La balle de riz est issue du processus de décorticage du grain et elle est souvent considérée comme un déchet de la riziculture. Les volumes générés par les producteurs sont importants mais très peu valorisés. La plupart du temps, la balle de riz est enfouie dans le sol ou calcinée pour la production d'énergie. Il s'agit pourtant d'une ressource lignocellulosique disponible tout au long de l'année et à faible coût.

La démarche générale du travail consistait à valoriser la balle de riz à l'état brut comme granulats végétaux à vocation isolante en l'associant à un liant minéral dans l'objectif d'élaborer un agromatériau pour l'éco-construction. Le béton obtenu a été comparé expérimentalement au béton de chanvre qui fait figure de référence. L'utilisation de balles céréalières pour la confection d'agrobétons à très faible masse volumique apparente (inférieure à  $800 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et au pouvoir isolant élevé est assez originale. Contrairement aux granulats issus du broyage de la tige végétale (comme la chènevotte), les balles de riz sont réutilisées sans broyage ce qui limite l'énergie de transformation du sous-produit et favorise encore davantage l'impact environnemental du matériau.

Les recherches présentées dans ce document font l'objet de conclusions suivant quatre parties :

- Partie ①

En premier lieu, une caractérisation des balles de riz de Camargue (Biosud, Arles) a été menée. Leurs propriétés physiques et morphologiques ainsi que leur capacité d'absorption d'eau ont été comparées avec celles d'une chènevotte commerciale (FRD, Troyes). Les balles de riz se caractérisent par une géométrie assez particulière. Elles se présentent sous la forme de demi-coques flexibles et de faible épaisseur (quelques micromètres) ce qui les différencie grandement des particules parallélépipédiques de chènevotte. La régularité dimensionnelle des grains de riz implique une étendue granulométrique des balles très resserrée tandis que le processus de broyage du chanvre entraîne une hétérogénéité plus grande sur le granulats de chènevotte, en particulier sur la longueur des particules. Par ailleurs, on a pu noter que la masse volumique apparente d'une particule végétale est plus élevée dans le cas de la balle de riz malgré que la masse volumique en vrac du granulats (avec les vides inter-granulaires) soit identique ( $\sim 100 \text{ kg.m}^{-3}$ ). Les balles de riz ont montré ensuite une capacité d'absorption d'eau plus faible que celle de la chènevotte en lien avec une porosité intra-granulaire moins développée et plus fermée.

Les particules végétales ont été ensuite associées à un liant à base de 50% en masse de chaux aérienne CL90-S et de chaux hydraulique NHL3.5 pour confectionner les agrobétons. Le choix du liant s'est effectué sur plusieurs critères. Il s'agissait notamment de formuler un agrobéton dont l'impact carbone est le plus faible possible conformément à la démarche exposée dans l'étude bibliographique. La fixation du CO<sub>2</sub> par le liant à base de chaux au cours du processus de carbonatation a donc été considérée comme un avantage indéniable pour contribuer au développement d'un agrobéton local et à faible impact environnemental. La chaux aérienne est un excellent candidat pour favoriser la régulation hygrothermique et le pouvoir de carbonatation. La chaux hydraulique a été choisie initialement pour apporter plus de réactivité à court terme et contribuer ainsi à une acquisition plus rapide de la résistance mécanique des agrobétons.

Les granulats végétaux ont été prémouillés préalablement à l'ajout du liant et de l'eau de gâchage de façon à limiter le problème du déficit d'eau lorsque celle-ci est absorbée par les granulats. La quantité d'eau de prémouillage à utiliser a été définie en fonction de la capacité d'absorption d'eau des particules végétales après 5 minutes d'immersion. Le béton à base de balles de riz a ainsi pu bénéficier d'un ratio massique eau/liant (E/L) plus faible que celui du béton de chanvre. Par ailleurs, le ratio massique liant/granat (L/G) a été choisi en fonction de la littérature traitant des bétons de chanvre et des masses volumiques apparentes visés à l'état sec. La masse volumique apparente plus élevée de la balle de riz a imposé une densité apparente du béton plus importante en comparaison du béton de chanvre pour un rapport L/G donné.

Les mesures de conductivité thermique des agrobétons ont été menées pour un ratio massique L/G variant de 1,5 à 2,5. Ce ratio correspondait à une densité apparente variant de 500 à 730 kg.m<sup>-3</sup> pour le béton à base de balles de riz et de 360 à 600 kg.m<sup>-3</sup> pour le béton de chanvre. Il a été montré que la conductivité thermique du béton à base de balles de riz est comparable à celle du béton de chanvre pour un ratio L/G donné. Elle a varié d'environ 0,10 à 0,14 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> selon les dosages utilisés lorsqu'elle a été mesurée à l'état sec. La granulométrie très homogène de la balle de riz, sa morphologie en demi-coque et sa masse volumique apparente élevée ont favorisé le niveau de macroporosité inter-granulaire qui s'est montré en définitive équivalent à celui du béton de chanvre pour un ratio L/G donné. Cette porosité inter-granulaire jouerait donc un rôle très important sur le pouvoir isolant de ces formulations à fort dosage volumique en granulats.

Les caractéristiques mécaniques en compression des agrobétons ont été évaluées après 28 jours et après 2 mois de conservation à 20°C et 50%HR pour un ratio massique L/G égal à 2. Elles se sont révélées plus faibles pour le béton à base de balles de riz mais satisfaisantes du point de vue des règles professionnelles de la construction en chanvre pour une application en remplissage de structure porteuse.

Le travail s'est ensuite focalisé sur l'étude des performances mécaniques des agrobétons qui seront évaluées sur la formulation correspondant au ratio massique L/G égal à 2.

- Partie ②

Les performances mécaniques en compression des agrobétons ont été suivies durant 10 mois de conservation soit à 20°C et 50%HR, soit en exposition extérieure sous abris. Le gain de résistance mécanique entre 28 jours et 10 mois a été deux fois plus élevé pour le béton de chanvre. En conservation extérieure, il s'est élevé à 135% tandis qu'il n'était que de 70% pour le béton à base de balles de riz. Cette évolution temporelle de la résistance mécanique plus limitée pour le béton de balles de riz pouvait ainsi être le reflet d'un durcissement du liant plus défavorable, d'une liaison mécanique pâte-granulat de plus mauvaise qualité ou de l'association des deux. Cette partie s'est orientée vers la caractérisation du durcissement du liant à base de chaux au cours des 10 mois de conservation. Elle a concerné l'évolution du taux de carbonatation (influencé notamment par le réseau poreux) et l'avancement de l'hydratation (pouvant être perturbée par les extractibles solubles). Les résultats ont mis en évidence une cinétique de durcissement équivalente pour les deux bétons et ont ainsi démontré que les performances mécaniques du béton de balles de riz sont limitées par la liaison mécanique liant/particule. Par ailleurs, la conservation extérieure a été plus favorable à la cinétique de carbonatation que la conservation à 20°C et 50%HR. Le suivi des conditions climatiques durant les 10 mois de conservation extérieure a montré que l'humidité relative a varié entre 45% et 75%. Ainsi, le gain de résistance mécanique des agrobétons entre 28 jours et 10 mois s'est montré deux fois plus élevé dans ces conditions.

Dans l'objectif d'accélérer le développement de résistance mécanique des agrobétons et ainsi obtenir de meilleures performances à court terme, une cure en carbonatation accélérée a été proposée. Les éprouvettes ont été préalablement pré-conditionnées 40 jours à 20°C et 50%HR afin de désaturer les pores et se placer dans des conditions idéales pour la diffusion du CO<sub>2</sub>. Les éprouvettes ont ensuite été conservées 30 jours dans une enceinte enrichie en CO<sub>2</sub> (à 50% en volume) et régulée à 65%HR afin de garantir des conditions idéales pour la diffusion et la dissolution du CO<sub>2</sub> dans le film d'eau des pores. Par la suite, les performances mécaniques et le durcissement du liant ont été caractérisés. La cure en carbonatation accélérée a permis d'obtenir une résistance en compression après 2 mois équivalente à celle obtenue après 10 mois de conservation extérieure soit 1 MPa pour le béton de chanvre et 0,6 MPa pour le béton de balles de riz avec un taux de carbonatation moyen d'environ 74%.

Ce travail a mis également en évidence une évolution de l'hydratation des C<sub>2</sub>S au cours des 10 mois de conservation. Cette hydratation semblait d'autant plus avancée que le taux de carbonatation était élevé. Cette corrélation entre carbonatation et hydratation nous a amené à supposer que l'eau apportée localement par la réaction de carbonatation viendrait

favoriser l'hydratation des grains de  $C_2S$  qui n'ont pas pu réagir convenablement au jeune âge en raison du taux d'humidité relative trop faible lors de la conservation ( $HR < 75\%$ ).

- Partie ③

Ayant constaté que l'évolution de la résistance mécanique du béton à base de balles de riz est assez limitée dans le temps malgré un taux de carbonatation croissant, le travail de thèse s'est porté sur un traitement des particules végétales dans une eau de chaux saturée préalablement à leur association avec le liant à base de chaux. L'objectif était d'améliorer l'adhésion de la balle de riz avec le liant. Le traitement consistait à immerger les particules végétales dans une eau de chaux (2g/L à 20°C) durant 24 heures. Les essais de compression à 28 jours ont montré que ce traitement a eu un impact négatif sur le béton de chanvre mais il a permis d'augmenter légèrement la résistance en compression du béton de balles de riz. C'est notamment le comportement mécanique à déformation élevée qui a été amélioré.

Les caractérisations de surface des particules végétales suite au traitement ont mis en évidence une dégradation importante de la paroi végétale de la chènevotte. Nous supposons que le traitement a entraîné une délignification de la paroi secondaire et par conséquent une perte de cohésion et de rigidité intrinsèque à la particule. En ce qui concerne la balle de riz, les résultats ont mis en évidence une dissolution assez conséquente de la membrane silico-cellulosique pouvant être responsable d'une hydrophilie plus importante des balles et ainsi améliorer leur affinité avec la chaux. Il a également été constaté une plus grande rugosité de surface résultant de la suppression de polysaccharides solubles et amorphes. Enfin, le niveau de contrainte plus élevé obtenu pour de forts taux de déformation laisse supposer une modification de la rigidité de la balle de riz. Une dissolution des composés les moins rigides peut par exemple augmenter le taux de cristallinité des particules.

- Partie ④

Les résultats obtenus dans la Partie 2 ont montré que la cinétique d'hydratation des  $C_2S$  est très lente lorsque les conditions de cure sont favorables à la carbonatation (45 – 75%HR). Il s'agissait alors d'évaluer l'effet d'une cure à 95%HR sur les performances mécaniques des agrobétons après 28 jours. De plus, une thermoactivation des réactions d'hydratation est étudiée en imposant une cure à 50°C et 95%HR durant les 7 premiers jours de cure.

L'étude a été menée sur des mortiers de chaux afin d'évaluer l'effet de ces conditions de cure sur le durcissement des liants. Nous avons montré que la cinétique d'hydratation des  $C_2S$  peut être fortement accélérée en ambiance humide. Les mortiers à base du liant utilisé pour élaborer les agrobétons se sont caractérisés par un développement de résistance mécanique à court terme très sensible à l'humidité relative malgré une proportion assez faible en  $C_2S$ . Ainsi, une conservation des mortiers de chaux durant 21 jours à 95%HR a

entraîné une résistance en compression presque 4 fois plus élevée que celle obtenue après 28 jours à 50%HR. L'élévation de température a eu également un effet particulièrement bénéfique puisqu'une conservation de ces mêmes mortiers durant 7 jours à 50°C a mené à une résistance en compression 2,3 fois plus élevée que celle obtenue sur les mortiers conservés 7 jours à 20°C.

En revanche, ces conditions de cure se sont montrées contre-productives pour les agrobétons puisqu'elles ont entraîné une chute de leurs performances mécaniques. En comparaison à une conservation standard à 50%HR, les propriétés mécaniques du béton de chanvre ont chuté lorsque celui-ci a été conservé à 95%HR même lorsque cela concernait uniquement les 7 premiers jours de cure. Le béton à base de balles de riz a été moins impacté par la cure humide et a montré des performances mécaniques en compression semblables. Le travail s'est donc orienté vers une première étude de la zone de transition entre les granulats végétaux et le liant. Celle-ci s'est montrée de très mauvaise qualité lorsque la cure s'est effectuée à 95%HR et en particulier pour le béton de chanvre pour lequel un mécanisme a été proposé. Le maintien d'une humidité relative très élevée implique une saturation en eau de la chènevotte et la persistance d'un film d'eau à l'interface avec le liant. Le dépôt de liant vers la surface du granulat par absorption capillaire est donc impossible. De plus, la période de cure est marquée par un durcissement du liant accéléré. Après séchage, la zone de transition est donc caractérisée par un vide très important rendant l'adhésion liant/chènevotte particulièrement médiocre. Ce mécanisme est moins adapté pour le béton à base de balles de riz pour lequel il a été nettement plus difficile de constater une différence flagrante de la qualité d'interface suivant la cure. Cela rejoint finalement le fait que la liaison mécanique liant/particule est déjà de moins bonne qualité à 50%HR dans le cas du béton de balles de riz. Enfin, il a été montré que la cure humide ainsi que l'élévation de température ont entraîné un lessivage assez important de polysaccharides vers le liant qui ont pu jouer en défaveur de la formation des hydrates au voisinage des particules végétales.

Finalement, les conditions de cure les plus favorables à la carbonatation sont préférables pour optimiser les performances mécaniques des agrobétons à base de chaux, y compris en présence d'une certaine proportion de silicates de calcium.

## Perspectives de travail

Ce travail de thèse est l'un des tout premiers, sinon le premier, dédié à la valorisation de la balle de riz à l'état brut comme granulats végétaux pour la confection d'agrobétons isolants à base de chaux.

En dehors du cadre universitaire, il est intéressant de souligner l'existence d'un certain nombre de volontés locales ayant mené à l'émergence de l'association « Bâtir en Balles » dont l'objectif est de parvenir à fédérer les acteurs de l'éco-construction et du décorticage des grains vêtus sur le même modèle que l'association « Construire en Chanvre » [103], [145].

Dans ce paragraphe, nous proposons un certain nombre de perspectives de travail nous paraissant d'une part judicieuses pour faire suite aux travaux présentés dans ce manuscrit et d'autre part indispensables pour poursuivre le développement d'agrobétons incorporant la balle de riz de Camargue comme granulats.

- Les propriétés thermiques des agrobétons ont été brièvement abordées dans ce travail de thèse. Une caractérisation du comportement hygrothermique du béton à base de balles de riz est donc nécessaire. Comme cela a été fait pour les bétons de chanvre, il paraît indispensable de s'intéresser à la régulation hydrique et thermique de ce matériau par divers essais (perméabilité à la vapeur d'eau, valeur tampon hydrique, régulation de la température intérieure par des essais à l'échelle de la paroi, etc.). Par ailleurs, les effets d'anisotropie liés à l'orientation des particules végétales lors de la mise en œuvre ont été étudiés pour les bétons de chanvre. Il serait intéressant de mesurer et comparer la conductivité thermique dans le sens parallèle et dans le sens perpendiculaire à la direction du compactage au moyen d'éprouvettes parallélépipédiques.

- Le traitement à l'eau de chaux a montré une efficacité assez relative pour améliorer la résistance en compression à 28 jours du béton de balles de riz. Cette résistance est passée de 0,28 MPa à 0,42 MPa, correspondant environ à la résistance en compression du béton de chanvre sans traitement. Par ailleurs, la cure en carbonatation accélérée a permis un gain de résistance en compression permettant au béton à base de balles de riz d'atteindre environ 0,6 MPa après 2 mois. Ce gain, assez modeste, est très certainement limité par la liaison mécanique liant/particule. Cependant, on peut imaginer qu'une cure en carbonatation accélérée sur un béton à base de balles de riz ayant été traitées à l'eau de chaux puisse finalement mener à une résistance en compression avoisinant 1 MPa. Ainsi, le cumul de ces procédés apparaît comme prometteur et devrait être étudié de façon plus approfondie dans le prolongement de ce travail de thèse.

Les éléments de littérature traitant de l'allègement de mortiers cimentaires par les balles de riz semblent mettre en évidence la nécessité ainsi que l'efficacité de divers traitements de

surface (NaOH, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, etc.). Il serait donc intéressant d'envisager et d'évaluer l'effet de ces traitements lorsque le liant utilisé est à base de chaux et que le dosage volumique en balles de riz est très élevé. Ce dernier aspect implique d'ailleurs le recours à des solutions de traitement devant rester simples à mettre en œuvre et adaptés pour de grands volumes de granulats.

- Le liant minéral qui a été utilisé dans ce travail est majoritairement aérien. De ce fait, le développement de résistance mécanique est long en raison du processus de durcissement par carbonatation aérienne. Cette dernière a pu être avantageusement accélérée. Toutefois, l'usage de conditions de cure favorables à l'hydratation s'est avéré contre-productif. Il paraît ainsi délicat de modifier la cinétique d'hydratation des C<sub>2</sub>S dans un tel système. L'addition de composés pouzzolaniques, qui a été assez largement étudiée pour les bétons de chanvre, est donc une piste à explorer. On veillera évidemment à maintenir l'impact environnemental de l'agrobéton le plus faible possible.

- Certains désagréments liés à la présence inopinée d'un rongeur dans le lieu de stockage des éprouvettes ont pu être constatés de façon ponctuelle. Il est important de préciser que la présence de la chaux ne semble pas freiner les rongeurs qui parviennent à « émietter » les agrobétons à base de balles de riz. Nous avons constaté que ce problème est inexistant pour le béton de chanvre. La présence résiduelle de grains de riz ou de poussières d'amidon dans les balles est donc fortement incriminée. Une attention particulière devra être portée sur cet aspect incitant à tendre vers l'utilisation de balles de riz exemptes de grains.

Cet aspect pose également la question de la durabilité de cet agrobéton vis-à-vis d'une éventuelle bio-colonisation par les micro-organismes en lien avec la présence des grains.



# Références bibliographiques

- [1] J. Salas Serrano and J. Veras Castro, "Materiales de construcción con propiedades aislantes a base de cascara de arroz," *Inf. la Constr.*, vol. n°372, 1985.
- [2] J. Salas, M. Alvarez, and J. Veras, "Lightweight insulating concretes with rice husk," *Int. J. Cem. Compos. Light. Concr.*, vol. 8, no. 3, pp. 171–180, 1986.
- [3] T. A. Boden, G. Marland, and R. J. Andres, "Global, regional and national fossil-fuel carbon dioxide emissions," *CDIAC (Carbon Dioxide Inf. Anal. Center) Oak ridge Natl. Lab.*, 2010.
- [4] C. Magniont, "Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un écomatériau de construction à base d'agroressources," Thèse de Doctorat de l'Université Toulouse III - Paul Sabatier, 2010.
- [5] J. Chamoin, "Optimisation des propriétés (physiques, mécaniques et hydriques) de bétons de chanvre par la maîtrise de la formulation," Thèse de Doctorat de l'Université de Rennes 1, INSA Rennes, 2013.
- [6] S. Amziane and L. Arnaud, *Les bétons de granulats d'origine végétale. Application au béton de chanvre*, Lavoisier. 2013.
- [7] Les Amis de la Terre, "Intégrer les écomatériaux dans les constructions et réhabilitations de logements sociaux," 2010.
- [8] Les Amis de la Terre, "Les écomatériaux en France: état des lieux et enjeux dans la rénovation thermique des logements," 2009.
- [9] M. P. Boutin, C. Flamin, S. Quinton, and G. Gosse, "Analyse du cycle de vie d'un mur en béton de chanvre banché sur ossature bois," 2005.
- [10] V. Nozahic, "Vers une nouvelle démarche de conception des bétons végétaux lignocellulosiques basée sur la compréhension et l'amélioration de l'interface Liant/Végétal. Application à des granulats de chènevotte et de tige de tournesol associés à un liant ponce/chaux," Thèse de Doctorat de l'Université Blaise Pascal, 2012.
- [11] M. Ibrahim Nasr Morsi, "Properties of rice straw cementitious composite," Thèse de doctorat de l'Université technique de Darmstadt, Allemagne, 2011.
- [12] C. Meirhaeghe, "Etude du gisement accessible de fibres végétales à usages matériaux en France.," *FRD*, 2011.
- [13] D. Asprone, M. Durante, A. Prota, and G. Manfredi, "Potential of structural pozzolanic matrix-hemp fiber grid composites," *Constr. Build. Mater.*, vol. 25, no. 6, pp. 2867–2874, Jun. 2011.

- [14] E. Boghossian and L. D. Wegner, "Use of flax fibres to reduce plastic shrinkage cracking in concrete," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 30, no. 10, pp. 929–937, Nov. 2008.
- [15] H. Savastano, P. G. Warden, and R. Coutts, "Potential of alternative fibre cements as building materials for developing areas," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 25, no. 6, pp. 585–592, Aug. 2003.
- [16] D. Sedan, "Etude des interactions physico-chimiques aux interfaces fibres de chanvre/ciment. Influence sur les propriétés mécaniques du composite," Groupe d'étude des Matériaux Hétérogènes - Thèse de Doctorat de l'Université de Limoges, 2007.
- [17] M. Le Troedec, D. Sedan, C. Peyratout, J. P. Bonnet, A. Smith, R. Guinebretiere, V. Gloaguen, and P. Krausz, "Influence of various chemical treatments on the composition and structure of hemp fibres," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, no. 3, pp. 514–522, Mar. 2008.
- [18] M. Le Troëdec, C. S. Peyratout, A. Smith, and T. Chotard, "Influence of various chemical treatments on the interactions between hemp fibres and a lime matrix," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 29, no. 10, pp. 1861–1868, Jul. 2009.
- [19] M. Le Troëdec, A. Rachini, C. Peyratout, S. Rossignol, E. Max, O. Kaftan, A. Fery, and A. Smith, "Influence of chemical treatments on adhesion properties of hemp fibres," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 356, no. 1, pp. 303–10, Apr. 2011.
- [20] A. Stamboulis, C. A. Baillie, and T. Peijs, "Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 32, no. 8, pp. 1105–1115, Aug. 2001.
- [21] J. L. Pehanich, P. R. Blankenhorn, and M. R. Silsbee, "Wood fiber surface treatment level effects on selected mechanical properties of wood fiber–cement composites," *Cem. Concr. Res.*, vol. 34, no. 1, pp. 59–65, Jan. 2004.
- [22] P. R. Blankenhorn, B. D. Blankenhorn, M. R. Silsbee, and M. DiCola, "Effects of fiber surface treatments on mechanical properties of wood fiber–cement composites," *Cem. Concr. Res.*, vol. 31, no. 7, pp. 1049–1055, Jul. 2001.
- [23] R. S. P. Coutts and P. G. Warden, "Effect of compaction on the properties of air-cured wood fibre reinforced cement," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 12, no. 3, pp. 151–156, Jan. 1990.
- [24] M. Fan, M. K. Ndikontar, X. Zhou, and J. N. Ngamveng, "Cement-bonded composites made from tropical woods: Compatibility of wood and cement," *Constr. Build. Mater.*, vol. 36, pp. 135–140, Nov. 2012.
- [25] L. Arnaud and E. Gourlay, "Experimental study of parameters influencing mechanical properties of hemp concretes," *Constr. Build. Mater.*, vol. 28, no. 1, pp. 50–56, Mar. 2012.
- [26] V. Cerezo, "Propriétés mécaniques , thermiques et acoustiques d'un matériau à base de particules végétales : approche expérimentale et modélisation théorique," Thèse de Doctorat de l'ENTPE de Lyon, 2005.

- [27] T. T. Nguyen, "Contribution à l'étude de la formulation et du procédé de fabrication d'éléments de construction en béton de chanvre," Thèse de Doctorat de l'Université de Bretagne-Sud, 2010.
- [28] A. Evrard, "Transient hygrothermal behaviour of Lime-Hemp Materials," Thèse de Doctorat de l'Université Catholique de Louvain, 2008.
- [29] A.-D. Tran Le, "Etude des transferts hygrothermiques dans le béton de chanvre et leur application au bâtiment," Thèse de Doctorat de l'Université de Reims Champagne-Ardenne, 2010.
- [30] E. P. Aigbomian and M. Fan, "Development of Wood-Crete building materials from sawdust and waste paper," *Constr. Build. Mater.*, vol. 40, pp. 361–366, Mar. 2013.
- [31] E. P. Aigbomian and M. Fan, "Development of wood-crete from treated sawdust," *Constr. Build. Mater.*, vol. 52, pp. 353–360, Feb. 2014.
- [32] S. Benfratello, C. Capitano, G. Peri, G. Rizzo, G. Scaccianoce, and G. Sorrentino, "Thermal and structural properties of a hemp–lime biocomposite," *Constr. Build. Mater.*, vol. 48, pp. 745–754, Nov. 2013.
- [33] F. Collet and S. Pretot, "Thermal conductivity of hemp concretes: Variation with formulation, density and water content," *Constr. Build. Mater.*, vol. 65, pp. 612–619, Aug. 2014.
- [34] F. Collet, J. Chamoin, S. Pretot, and C. Lanos, "Comparison of the hygric behaviour of three hemp concretes," *Energy Build.*, vol. 62, pp. 294–303, Jul. 2013.
- [35] Y. Diquélou, E. Gourlay, L. Arnaud, and B. Kurek, "Impact of hemp shiv on cement setting and hardening: influence of the extracted components from the aggregates and study of the interfaces with the inorganic matrix," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 55, pp. 112–121, Sep. 2014.
- [36] P. Faure, U. Peter, D. Lesueur, and P. Coussot, "Water transfers within Hemp Lime Concrete followed by NMR," *Cem. Concr. Res.*, vol. 42, no. 11, pp. 1468–1474, Nov. 2012.
- [37] R. Walker, S. Pavia, and R. Mitchell, "Mechanical properties and durability of hemp-lime concretes," *Constr. Build. Mater.*, vol. 61, pp. 340–348, Jun. 2014.
- [38] R. Walker and S. Pavía, "Moisture transfer and thermal properties of hemp–lime concretes," *Constr. Build. Mater.*, vol. 64, pp. 270–276, Aug. 2014.
- [39] M. Khazma, A. Goullieux, R.-M. Dheilly, and M. Quéneudec, "Coating of a lignocellulosic aggregate with pectin/polyethylenimin mixtures: Effects on flax shive and cement-shive composite properties," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 34, no. 2, pp. 223–230, Feb. 2012.
- [40] M. Khazma, A. Goullieux, R. M. Dheilly, B. Laidoudi, and M. Queneudec, "Impact of aggregate coating with a PEC elastomer on properties of lightweight flax shive concrete," *Ind. Crops Prod.*, vol. 33, no. 1, pp. 49–56, Jan. 2011.

- [41] E. Aamr-Day, T. Langlet, a. Benazzouk, and M. Quéneudec, "Feasibility study of lightweight cement composite containing flax by-product particles: Physico-mechanical properties," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 30, no. 10, pp. 957–963, Nov. 2008.
- [42] A. Govin, "Aspects physico-chimiques de l'interaction bois - ciment. Modification de l'hydratation du ciment par le bois," Thèse de Doctorat de l'Université Jean Monnet Saint-Etienne, 2004.
- [43] V. Nozahic, S. Amziane, G. Torrent, K. Saïdi, and H. De Baynast, "Design of green concrete made of plant-derived aggregates and a pumice–lime binder," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 34, no. 2, pp. 231–241, Feb. 2012.
- [44] V. Nozahic and S. Amziane, "Influence of sunflower aggregates surface treatments on physical properties and adhesion with a mineral binder," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, no. 11, pp. 1837–1849, Nov. 2012.
- [45] M. Chabannes, V. Nozahic, and S. Amziane, "Design and multi-physical properties of a new insulating concrete using sunflower stem aggregates and eco-friendly binders," *Mater. Struct.*, vol. 48, no. 6, pp. 1815–1829, Mar. 2014.
- [46] T. Le Ngoc Huyen, M. Queneudec T'kint, C. Remond, B. Chabbert, and R.-M. Dheilly, "Saccharification of *Miscanthus x giganteus*, incorporation of lignocellulosic by-product in cementitious matrix.," *C. R. Biol.*, vol. 334, no. 11, pp. 837.e1–837.e11, Nov. 2011.
- [47] D. M. Alonso, S. G. Wettstein, and J. A. Dumesic, "Bimetallic catalysts for upgrading of biomass to fuels and chemicals.," *Chem. Soc. Rev.*, vol. 41, no. 24, pp. 8075–98, Dec. 2012.
- [48] T. P. T. Tran, J.-C. Bénézet, and A. Bergeret, "Rice and Einkorn wheat husks reinforced poly(lactic acid) (PLA) biocomposites: Effects of alkaline and silane surface treatments of husks," *Ind. Crops Prod.*, vol. 58, pp. 111–124, Jul. 2014.
- [49] CETIOM, "Enquête culturelle - Chanvre 2013," 2013. [Online]. Available: <http://www.cetiom.fr>.
- [50] P. Glé, "Acoustique des Matériaux du Bâtiment à base de Fibres et Particules Végétales. Outils de Caractérisation , Modélisation et Optimisation," Thèse de Doctorat de l'ENTPE, 2013.
- [51] I. Couedel, "Le béton de chanvre comme matériau de construction, première approche mécanique du béton de chanvre," ENTPE, Vaulx-en-Velin, 1998.
- [52] C. Igathinathane, L. O. Pordesimo, E. P. Columbus, W. D. Batchelor, and S. Sokhansanj, "Sieveless particle size distribution analysis of particulate materials through computer vision," *Comput. Electron. Agric.*, vol. 66, pp. 147–158, 2009.
- [53] V. Picandet, P. Tronet, and C. Baley, "Caractérisation granulométrique des chènevottes," in *Rencontres AUGC-IBPSA*, 2012.
- [54] C. Garcia-Jaldon, D. Dupeyre, and M. R. Vignon, "Fibres from semi-retted hemp bundles by steam explosion treatment," *Biomass and Bioenergy*, vol. 14, no. 3, pp. 251–260, 1998.

- [55] A. Gmira, "Étude structurale et thermodynamique d'hydrates modèle du ciment," Thèse de Doctorat de l'Université d'Orléans, 2004.
- [56] S. Siddiqui, "Effect of Temperature and Curing on the Early Hydration of cementitious materials," Bangladesh University of Engineering and Technology, 2010.
- [57] A. Kouakou, C. Legrand, and E. Wirquin, "Mesure de l'énergie d'activation apparente des ciments dans les mortiers à l'aide du calorimètre semi-adiabatique de Langavant," *Mater. Struct.*, vol. 29, pp. 444–447, 1996.
- [58] T. Boubekur, K. Ezziane, and E.-H. Kadri, "Estimation of mortars compressive strength at different curing temperature by the maturity method," *Constr. Build. Mater.*, vol. 71, pp. 299–307, 2014.
- [59] K. O. Kjellsen, R. J. Detwiler, and O. E. Gjrv, "Pore structure of plain cement pastes hydrated at different temperatures," *Cem. Concr. Res.*, vol. 20, no. 6, pp. 927–933, 1990.
- [60] J.-K. Kim, Y.-H. Moon, and S.-H. Eo, "Compressive strength development of concrete with different curing time and temperature," *Cement and Concrete Research*, vol. 28, no. 12, pp. 1761–1773, 1998.
- [61] C. Famy, K. L. Scrivener, A. Atkinson, and A. R. Brough, "Effects of an early or a late heat treatment on the microstructure and composition of inner C-S-H products of Portland cement mortars," *Cem. Concr. Res.*, vol. 32, no. 2, pp. 269–278, 2002.
- [62] E. Gallucci, X. Y. Zhang, and K. Scrivener, "Influence de la température sur le développement microstructural des bétons," *Septième édition des journées Sci. du regroupement Francoph. pour la Rech. la Form. sur le Bét.*, p. 10, 2006.
- [63] J. Marchand, "Pâtes de ciment. Résultats des essais mécaniques à 28 jours. Rapport interne, LCPC," 1992.
- [64] J. Olmeda, M. I. Sánchez De Rojas, M. Frías, S. Donatello, and C. R. Cheeseman, "Effect of petroleum (pet) coke addition on the density and thermal conductivity of cement pastes and mortars," *Fuel*, vol. 107, no. 2013, pp. 138–146, 2013.
- [65] R. Demirboga, "Influence of mineral admixtures on thermal conductivity and compressive strength of mortar," vol. 35, pp. 189–192, 2003.
- [66] G. Martinet and P. Souchu, "La chaux. Définition et Histoire," *Techniques de l'Ingénieur*, 2009.
- [67] "NF EN 459-1 Standard. Building Lime - Part 1.," 2012.
- [68] Ö. Cizer, K. Van Balen, J. Elsen, and D. Van Gemert, "Real-time investigation of reaction rate and mineral phase modifications of lime carbonation," *Constr. Build. Mater.*, vol. 35, pp. 741–751, 2012.

- [69] S. Bernal, J. Provis, R. Mejia de Gutierrez, and J. Van Deventer, "Accelerated carbonation testing of alkali-activated slag/metakaolin blended concretes: effect of exposure conditions," *Mater. Struct.*, 2015.
- [70] M. Fernández Bertos, S. J. R. Simons, C. D. Hills, and P. J. Carey, "A review of accelerated carbonation technology in the treatment of cement-based materials and sequestration of CO<sub>2</sub>," *J. Hazard. Mater.*, vol. 112, no. 3, pp. 193–205, 2004.
- [71] A. Morandea, M. Thiéry, and P. Dangla, "Investigation of the carbonation mechanism of CH and C-S-H in terms of kinetics, microstructure changes and moisture properties," *Cem. Concr. Res.*, vol. 56, pp. 153–170, 2014.
- [72] C. Shi, F. He, and Y. Wu, "Effect of pre-conditioning on CO<sub>2</sub> curing of lightweight concrete blocks mixtures," *Constr. Build. Mater.*, vol. 26, no. 1, pp. 257–267, 2012.
- [73] J. Lanas and J. I. Alvarez, "Masonry repair lime-based mortars: Factors affecting the mechanical behavior," *Cem. Concr. Res.*, vol. 33, no. 11, pp. 1867–1876, 2003.
- [74] A. Moropoulou, A. Bakolas, P. Moundoulas, E. Aggelakopoulou, and S. Anagnostopoulou, "Strength development and lime reaction in mortars for repairing historic masonries," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 27, no. 2, pp. 289–294, 2005.
- [75] A. Izaguirre, J. Lanas, and J. I. Álvarez, "Characterization of aerial lime-based mortars modified by the addition of two different water-retaining agents," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 33, no. 2, pp. 309–318, 2011.
- [76] A. Izaguirre, J. Lanas, and J. I. Alvarez, "Effect of water-repellent admixtures on the behaviour of aerial lime-based mortars," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 39, pp. 1095–1104, 2009.
- [77] A. Arizzi and G. Cultrone, "Aerial lime-based mortars blended with a pozzolanic additive and different admixtures: A mineralogical, textural and physical-mechanical study," *Constr. Build. Mater.*, vol. 31, pp. 135–143, 2012.
- [78] E. Vejmelková, R. Pernicová, R. Sovják, and R. Černý, "Properties of innovative renders on a lime basis for the renovation of historical buildings," 2009, pp. 221–229.
- [79] E. Vejmelková, M. Keppert, Z. Keršner, P. Rovnaníková, and R. Černý, "Mechanical, fracture-mechanical, hydric, thermal, and durability properties of lime-metakaolin plasters for renovation of historical buildings," *Constr. Build. Mater.*, vol. 31, pp. 22–28, 2012.
- [80] A. Velosa, F. Rocha, and R. Veiga, "Influence of chemical and mineralogical composition of metakaolin on mortar characteristics," *Acta Geodyn. e Geomater.*, vol. 6, no. 1, pp. 121–126, 2009.
- [81] M. Stefanidou, "Study of the microstructure and the mechanical properties of traditional repair mortars," PhD Thesis, Department of Civil Engineering. Thessaloniki, 2000.



- [82] M. R. Veiga and F. Carvalho, "Some performances characteristics of lime mortars for use on rendering and repointing of ancient buildings," in *5th International Masonry Conference*, 1998, pp. 107–111.
- [83] C. Shi and R. L. Day, "Acceleration of strength gain of lime-pozzolan cements by thermal activation," *Cem. Concr. Res.*, vol. 23, pp. 824–832, 1993.
- [84] P. Turcry, L. Oksri-Nelfia, A. Younsi, and A. Aït-Mokhtar, "Analysis of an accelerated carbonation test with severe preconditioning," *Cem. Concr. Res.*, vol. 57, pp. 70–78, 2014.
- [85] R. M. H. Lawrence, "A study of carbonation in non-hydraulic lime mortars," University of Bath, 2006.
- [86] R. M. H. Lawrence, T. J. Mays, P. Walker, and D. D'Ayala, "Determination of carbonation profiles in non-hydraulic lime mortars using thermogravimetric analysis," *Thermochim. Acta*, vol. 444, no. 2, pp. 179–189, 2006.
- [87] R. M. Lawrence, T. J. Mays, S. P. Rigby, P. Walker, and D. D'Ayala, "Effects of carbonation on the pore structure of non-hydraulic lime mortars," *Cem. Concr. Res.*, vol. 37, no. 7, pp. 1059–1069, Jul. 2007.
- [88] G. Cultrone, E. Sebastián, and M. O. Huertas, "Forced and natural carbonation of lime-based mortars with and without additives: Mineralogical and textural changes," *Cem. Concr. Res.*, vol. 35, no. 12, pp. 2278–2289, 2005.
- [89] M. Arandigoyen, J. L. P. Bernal, M. A. B. López, and J. I. Alvarez, "Lime-pastes with different kneading water: Pore structure and capillary porosity," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 252, no. 5, pp. 1449–1459, 2005.
- [90] E. Vejmelková, M. Keppert, P. Rovnaníková, Z. Keršner, and R. Černý, "Application of burnt clay shale as pozzolan addition to lime mortar," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 34, no. 4, pp. 486–492, 2012.
- [91] R. Cerny, Z. Pavlik, and M. Pavlikova, "Hygric and thermal properties of materials of historical masonry," in *Proceedings on the 8th symposium on building physics in the Nordic Countries*, 2008, pp. 903–910.
- [92] cd2e acteur de l'éco-transition, "Énergie grise des chaux." [Online]. Available: <http://siteindex.cd2e.com/chaux.html>.
- [93] CESA, "St Astier Pure and Natural Hydraulic Limes." [Online]. Available: <http://www.stastier.co.uk/nhl/info/hydraul.htm>.
- [94] J. Grilo, A. Santos Silva, P. Faria, A. Gameiro, R. Veiga, and A. Velosa, "Mechanical and mineralogical properties of natural hydraulic lime-metakaolin mortars in different curing conditions," *Constr. Build. Mater.*, vol. 51, pp. 287–294, 2014.
- [95] J. Lanas, J. L. P. Bernal, M. Bello, and J. I. Galindo, "Mechanical properties of natural hydraulic lime-based mortars," *Cem. Concr. Res.*, vol. 34, pp. 2191–2201, 2004.



- [96] "NF EN 459-2 Standard. Building Lime, test methods - Part 2," 2012.
- [97] O. Cizer, K. Van Balen, and D. Van Gemert, "Competition between carbonation and hydration on the hardening of calcium hydroxide and calcium silicate binders," *Adv. Mater. Res.*, 2010.
- [98] J. Grilo, P. Faria, R. Veiga, A. Santos Silva, V. Silva, and A. Velosa, "New natural hydraulic lime mortars - Physical and microstructural properties in different curing conditions," *Constr. Build. Mater.*, vol. 54, pp. 378–384, 2014.
- [99] A. Arizzi, G. Martinez-Huerga, E. Sebastián-Pardo, and G. Cultrone, "Mineralogical, textural and physical-mechanical study of hydraulic lime mortars cured under different moisture conditions," *Mater. Construcción*, vol. 65, no. 318, p. e053, Jun. 2015.
- [100] P.-Y. Bütschi, "Utilisation du chanvre pour la préfabrication d'éléments de construction," Université de Moncton, Canada, 2004.
- [101] P. De Bruijn, "Hemp Concrete: Mechanical properties using both shives and fibers," Faculty of Landscape planning. Swedish University of Agricultural Sciences, 2008.
- [102] B. Silva, A. Ferreira Pinto, and A. Gomes, "Influence of natural hydraulic lime content on the properties of aerial lime-based mortars," *Constr. Build. Mater.*, vol. 72, pp. 208–218, 2014.
- [103] C. en Chanvre, *Constuire en Chanvre. Règles professionnelles d'exécution*, SEBTP. 2012.
- [104] D. T. Manh, "Contribution au développement du béton de chanvre préfabriqué utilisant un liant pouzzolanique innovant," Thèse de Doctorat de l'Université Toulouse 3 (Paul Sabatier), 2014.
- [105] P. Glé, E. Gourdon, and L. Arnaud, "Acoustical properties of materials made of vegetable particles with several scales of porosity," *Appl. Acoust.*, vol. 72, no. 5, pp. 249–259, Apr. 2011.
- [106] P. Glé, E. Gourdon, and L. Arnaud, "Modelling of the acoustical properties of hemp particles," *Constr. Build. Mater.*, vol. 37, pp. 801–811, Dec. 2012.
- [107] F. Collet, M. Bart, L. Serres, and J. Miriel, "Porous structure and water vapour sorption of hemp-based materials," *Constr. Build. Mater.*, vol. 22, no. 6, pp. 1271–1280, 2008.
- [108] B. P. Jelle, "Traditional, state-of-the-art and future thermal building insulation materials and solutions - Properties, requirements and possibilities," *Energy Build.*, vol. 43, no. 10, pp. 2549–2563, 2011.
- [109] F. Stazi, F. Tittarelli, G. Politi, C. Di Perna, and P. Munafò, "Assessment of the actual hygrothermal performance of glass mineral wool insulation applied 25 years ago in masonry cavity walls," *Energy Build.*, vol. 68, no. PARTA, pp. 292–304, 2014.

- [110] F. Collet, S. Pretot, and C. Lanos, "Performance hydrique de bétons de chanvre : effet de l'enduit sur leur capacité de régulateurs hydriques," *31ème Rencontres AUGC ENS Cachan*, pp. 1–10, 2013.
- [111] F. Collet and S. Pretot, "Experimental investigation of moisture buffering capacity of sprayed hemp concrete," *Constr. Build. Mater.*, vol. 36, pp. 58–65, 2012.
- [112] E. Gourlay and L. Arnaud, "Des matières premières au béton de chanvre : optimisation des propriétés thermiques et mécaniques," in *20ème Congrès Français de Mécanique*, 2011, pp. 1–6.
- [113] E. Hirst, P. Walker, K. Paine, and T. Yates, "Characterisation of low density hemp-lime composite building materials under compression loading," 2010.
- [114] R. Walker and S. Pavia, "Influence of the Type of Binder on the Properties of Lime-Hemp Concrete," in *Construction and Building Research*, Dordrecht: Springer Netherlands, 2014, pp. 505–514.
- [115] S. Elfordy, F. Lucas, F. Tancret, Y. Scudeller, and L. Goudet, "Mechanical and thermal properties of lime and hemp concrete ('hempcrete') manufactured by a projection process," *Constr. Build. Mater.*, vol. 22, no. 10, pp. 2116–2123, 2008.
- [116] P. Monreal, L. B. Mboumba-Mamboundou, R. M. Dheilly, and M. Quéneudec, "Effects of aggregate coating on the hygral properties of lignocellulosic composites," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 33, no. 2, pp. 301–308, 2011.
- [117] C. Groot and J. Larbi, "The influence of water flow (reversal) on bond strength development in young masonry," *HERON*, vol. 44, no. 2, pp. 63–78, 1999.
- [118] R. Walker and S. Pavía, "Effect of Hemp'S Soluble Components on the Physical Properties of Hemp Concrete," *J. Mater. Sci. Res.*, vol. 3, no. 3, pp. 12–23, 2014.
- [119] A. Peschard, A. Govin, P. Grosseau, B. Guilhot, and R. Guyonnet, "Effect of polysaccharides on the hydration of cement paste at early ages," *Cem. Concr. Res.*, vol. 34, no. 11, pp. 2153–2158, 2004.
- [120] A. Peschard, A. Govin, J. Pourchez, E. Fredon, L. Bertrand, and B. Guilhot, "Effect of polysaccharides on the hydration of cement suspension," *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2011.
- [121] C. Dupraz, R. P. Reid, O. Braissant, A. W. Decho, R. S. Norman, and P. T. Visscher, "Processes of carbonate precipitation in modern microbial mats," *Earth-Science Rev.*, vol. 96, no. 3, pp. 141–162, 2009.
- [122] A. A. Moslemi, J. . Garcia, and A. D. Hofstrand, "Effect of various treatments and additives on wood - portland cement - water systems," *Wood Fiber Sci.*, vol. 15, pp. 164–176, 1983.
- [123] N. Številová, E. Terpáková, J. Čigášová, J. Junák, and L. Kidalová, "Chemically treated hemp shives as a suitable organic filler for lightweight composites preparing," *Procedia Eng.*, vol. 42, no. August, pp. 948–954, 2012.

- [124] N. Stevulova, J. Cigasova, A. Estokova, E. Terpakova, A. Geffert, F. Kacik, E. Singovszka, and M. Holub, "Properties Characterization of Chemically Modified Hemp Hurds," *Materials (Basel)*, vol. 7, no. 12, pp. 8131–8150, 2014.
- [125] M. Khazma, A. Goullieux, R.-M. Dheilly, A. Rougier, and M. Quéneudec, "Optimization of flax shive-cementitious composites: Impact of different aggregate treatments using linseed oil," *Ind. Crops Prod.*, vol. 61, pp. 442–452, 2014.
- [126] M. Khazma, N. El Hajj, A. Goullieux, R. M. Dheilly, and M. Queneudec, "Influence of sucrose addition on the performance of a lignocellulosic composite with a cementitious matrix," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, no. 12, pp. 1901–1908, 2008.
- [127] FAO, "Classement mondial 2013 des pays producteurs de riz paddy," 2014. [Online]. Available: <http://www.lasyntheseonline.fr>.
- [128] W. P. Armstrong, "Fruit Terminology - Part 2," 2001. [Online]. Available: <http://waynesword.palomar.edu/termfr2.htm>.
- [129] K. Ganesan, K. Rajagopal, and K. Thangavel, "Rice husk ash blended cement: Assessment of optimal level of replacement for strength and permeability properties of concrete," *Constr. Build. Mater.*, vol. 22, no. 8, pp. 1675–1683, 2008.
- [130] T. Serrano, M. Victoria Borrachero, J. Monzó, and J. Payà, "Morteros aligerados con cascarilla de arroz: diseño de mezclas evaluación de propiedades," *Dyna*, vol. 175, pp. 128–136, 2012.
- [131] R. Jauberthie, F. Rendell, S. Tamba, and I. Cisse, "Origin of the pozzolanic effect of rice husks," *Constr. Build. Mater.*, vol. 14, no. 8, pp. 419–423, Dec. 2000.
- [132] V. Van, C. Rößler, D. Bui, and H. Ludwig, "Rice husk ash as both pozzolanic admixture and internal curing agent in ultra-high performance concrete," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 53, pp. 270–278, 2014.
- [133] P. Chindaprasirt, S. Homwuttiwong, and C. Jaturapitakkul, "Strength and water permeability of concrete containing palm oil fuel ash and rice husk-bark ash," *Constr. Build. Mater.*, vol. 21, no. 7, pp. 1492–1499, 2007.
- [134] G. C. Cordeiro, R. D. Toledo Filho, L. M. Tavares, E. D. M. R. Fairbairn, and S. Hempel, "Influence of particle size and specific surface area on the pozzolanic activity of residual rice husk ash," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 33, no. 5, pp. 529–534, 2011.
- [135] W. Xu, Y. T. Lo, D. Ouyang, S. A. Memon, F. Xing, W. Wang, and X. Yuan, "Effect of rice husk ash fineness on porosity and hydration reaction of blended cement paste," *Constr. Build. Mater.*, vol. 89, pp. 90–101, 2015.
- [136] N. Johar, I. Ahmad, and A. Dufresne, "Extraction, preparation and characterization of cellulose fibres and nanocrystals from rice husk," *Ind. Crops Prod.*, vol. 37, no. 1, pp. 93–99, 2012.
- [137] B.-D. Park, S. G. Wi, K. H. Lee, A. P. Singh, T.-H. Yoon, and Y. S. Kim, "Characterization of anatomical features and silica distribution in rice husk using

- microscopic and micro-analytical techniques," *Biomass and Bioenergy*, vol. 25, no. 3, pp. 319–327, Sep. 2003.
- [138] S. K. Jha and A. Singh, "Physical and thermal properties of untreated and chemically treated rice husk," *J. Agric. Eng.*, vol. 44, no. 4, 2007.
- [139] M. González De la Cotera, "Morteros ligeros de cáscara de arroz," in *IV Congreso Nacional de Ingeniería Civil*, 1982.
- [140] A. Prada and C. E. Cortés, "La descomposición térmica de la cascarilla de arroz: una alternativa de aprovechamiento integral," *Rev. ORINOQUIA*, vol. 14, no. 1, pp. 155–170, 2010.
- [141] A. Kaupp and J. Goss, "Technical and economical problems in the gasification of rice hulls. Physical and chemical properties," *Energy Agric.*, vol. 1, pp. 201–234, 1983.
- [142] D. W. Yarbrough, "Apparent Thermal Conductivity Data and Related Information for Rice Hulls and Crushed Pecan Shells," *Therm. Cond.*, vol. 27, pp. 22–230, 2005.
- [143] S. Tamba, I. Cisse, F. Rendell, and R. Jauberthie, "Rice husk in lightweight mortars," in *Second international symposium on structural lightweight aggregate concrete*, 2000.
- [144] K. G. Mansaray, A. E. Ghaly, "Thermal Degradation of Rice Husks in an Oxygen Atmosphere," *Energy Sources*, vol. 21, no. 5, pp. 453–466, 1999.
- [145] P. Delot, "La balle de riz de Camargue," *Association le Village*. [Online]. Available: <http://www.ballederiz.fr/>.
- [146] S. Tamba, "Bétons légers à base de déchets cellulósiques," Thèse de Doctorat de l'INSA de Rennes, 2001.
- [147] C. B. Sisman, E. Gezer, and I. Kocaman, "Effects of organic waste (rice husk) on the concrete properties for farm buildings," *Bulg. J. Agric. Sci.*, vol. 17, no. 1, pp. 40–48, 2011.
- [148] R. Jauberthie, F. Rendell, S. Tamba, and I. Cissé, "Properties of cement—rice husk mixture," *Constr. Build. Mater.*, vol. 17, pp. 239–243, 2003.
- [149] A. Arizzi, G. Cultrone, M. Brümmer, and H. Viles, "A chemical, morphological and mineralogical study on the interaction between hemp hurds and aerial and natural hydraulic lime particles: Implications for mortar manufacturing," *Constr. Build. Mater.*, vol. 75, pp. 375–384, 2015.
- [150] A. M. Forster, E. M. Szadurski, and P. F. G. Banfill, "Deterioration of natural hydraulic lime mortars, I: Effects of chemically accelerated leaching on physical and mechanical properties of uncarbonated materials," *Constr. Build. Mater.*, vol. 72, pp. 199–207, 2014.
- [151] "Fontionnement du MEB. Principe de la microanalyse EDX." [Online]. Available: <http://jean-jacques.auclair.pagesperso-orange.fr/meb/meb.htm>.

- [152] C. Boher, "Étude expérimentale et modélisation de la diffusion gazeuse à travers des milieux poreux partiellement saturés en eau. Application aux verres Vycor, géopolymères et pâtes de ciment CEM V," Thèse de l'Université de Toulouse III (INSA-UPS), 2012.
- [153] M. Cerruti, "Surface characterization of silicate bioceramics," *Philos. Trans. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 370, no. 1963, pp. 1281–1312, 2012.
- [154] R. Coquard, D. Baillis, and D. Quenard, "Experimental and theoretical study of the hot-wire method applied to low-density thermal insulators," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 49, no. 23–24, pp. 4511–4524, 2006.
- [155] A. Degiovanni, "Conductivité et diffusivité thermique des solides," Techniques de l'Ingénieur, 1994.
- [156] K. Bilba and M. Arsene, "Silane treatment of bagasse fiber for reinforcement of cementitious composites," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, no. 9, pp. 1488–1495, Sep. 2008.
- [157] T. T. Nguyen, V. Picandet, P. Carre, T. Lecompte, S. Amziane, and C. Baley, "Effect of compaction on mechanical and thermal properties of hemp concrete," *Eur. J. Environ. Civ. Eng.*, vol. 14, no. 5, pp. 545–560, 2010.
- [158] T.-T. Nguyen, V. Picandet, S. Amziane, and C. Baley, "Influence of compactness and hemp hurd characteristics on the mechanical properties of lime and hemp concrete," *Eur. J. Environ. Civ. Eng.*, vol. 13, no. 9, pp. 1039–1050, 2009.
- [159] K. Ip and A. Miller, "Life cycle greenhouse gas emissions of hemp-lime wall constructions in the UK," *Resour. Conserv. Recycl.*, vol. 69, pp. 1–9, 2012.
- [160] R. Jauberthie, F. Rendell, S. E. Tamba, and I. K. Cissé, "Properties of cement - Rice husk mixture," *Constr. Build. Mater.*, vol. 17, no. 4, pp. 239–243, 2003.
- [161] A. Shea, M. Lawrence, and P. Walker, "Hygrothermal performance of an experimental hemp-lime building," *Constr. Build. Mater.*, vol. 36, pp. 270–275, 2012.
- [162] L. G. Baltazar, F. M. Henriques, F. Jorne, and M. T. Cidade, "Combined effect of superplasticizer, silica fume and temperature in the performance of natural hydraulic lime grouts," *Constr. Build. Mater.*, vol. 50, pp. 584–597, 2014.
- [163] A. Franco, "An apparatus for the routine measurement of thermal conductivity of materials for building application based on a transient hot-wire method," *Appl. Therm. Eng.*, vol. 27, no. 14–15, pp. 2495–2504, 2007.
- [164] R. Rowell, "Moisture properties," in *Handbook of wood chemistry and wood composites*, 2005, p. 21.
- [165] D. Sedan, C. Pagnoux, A. Smith, and T. Chotard, "Mechanical properties of hemp fibre reinforced cement: Influence of the fibre/matrix interaction," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 28, no. 1, pp. 183–192, 2008.

- [166] A. Sellami, M. Merzoud, and S. Amziane, "Improvement of mechanical properties of green concrete by treatment of the vegetals fibers," *Constr. Build. Mater.*, vol. 47, pp. 1117–1124, 2013.
- [167] S. Asavapisit, G. Fowler, and C. Cheeseman, "Solution Chemistry During Cement Hydration in the presence of metal hydroxide wastes," *Cem. Concr. Res.*, vol. 27, no. 8, pp. 1249–1260, 1997.
- [168] M. Chabannes, J.-C. Bénézet, L. Clerc, and E. Garcia-Diaz, "Use of raw rice husk as natural aggregate in a lightweight insulating concrete: An innovative application," *Constr. Build. Mater.*, vol. 70, pp. 428–438, Nov. 2014.
- [169] M. P. Seabra, H. Paiva, J. a. Labrincha, and V. M. Ferreira, "Admixtures effect on fresh state properties of aerial lime based mortars," *Constr. Build. Mater.*, vol. 23, no. 2, pp. 1147–1153, 2009.
- [170] A. Izaguirre, J. Lanas, and J. I. Álvarez, "Ageing of lime mortars with admixtures: Durability and strength assessment," *Cem. Concr. Res.*, vol. 40, no. 7, pp. 1081–1095, 2010.
- [171] F. Medici and G. Rinaldi, "Poly-Amino-Phenolic Additives Accelerating the Carbonation of Hydrated Lime in Mortar," *Environ. Eng. Sci.*, vol. 19, no. 4, pp. 271–276, Jul. 2002.
- [172] F. Medici, L. Piga, and G. Rinaldi, "Behaviour of polyaminophenolic additives in the granulation of lime and fly-ash," *Waste Manag.*, vol. 20, no. 7, pp. 491–498, 2000.
- [173] A. E. F. S. Almeida, G. H. D. Tonoli, S. F. Santos, and H. Savastano, "Improved durability of vegetable fiber reinforced cement composite subject to accelerated carbonation at early age," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 42, pp. 49–58, 2013.
- [174] V. D. Pizzol, L. M. Mendes, L. Frezzatti, H. Savastano, and G. H. D. Tonoli, "Effect of accelerated carbonation on the microstructure and physical properties of hybrid fiber-cement composites," *Miner. Eng.*, vol. 59, pp. 101–106, 2014.
- [175] V. D. Pizzol, L. M. Mendes, H. Savastano, M. Frías, F. J. Davila, M. a. Cincotto, V. M. John, and G. H. D. Tonoli, "Mineralogical and microstructural changes promoted by accelerated carbonation and ageing cycles of hybrid fiber-cement composites," *Constr. Build. Mater.*, vol. 68, pp. 750–756, 2014.
- [176] Ö. Cizer, C. Rodriguez-Navarro, E. Ruiz-Agudo, J. Elsen, D. Van Gemert, and K. Van Balen, "Phase and morphology evolution of calcium carbonate precipitated by carbonation of hydrated lime," *J. Mater. Sci.*, vol. 47, no. 16, pp. 6151–6165, 2012.
- [177] V. Wiktor, F. De Leo, C. Urzì, R. Guyonnet, P. Grosseau, and E. Garcia-Diaz, "Accelerated laboratory test to study fungal biodeterioration of cementitious matrix," *Int. Biodeterior. Biodegradation*, vol. 63, no. 8, pp. 1061–1065, Dec. 2009.
- [178] T. Colinart, P. Glouannec, and P. Chauvelon, "Influence of the setting process and the formulation on the drying of hemp concrete," *Constr. Build. Mater.*, vol. 30, pp. 372–380, May 2012.



- [179] R. Jones, "Cement mixtures with alkali-intolerant matter and methods," US 5690729, 1997.
- [180] S. Xu, J. Wang, and Y. Sun, "Effect of water binder ratio on the early hydration of natural hydraulic lime," *Mater. Struct.*, 2014.
- [181] S. Goñi, F. Puertas, M. S. Hernández, M. Palacios, A. Guerrero, J. S. Dolado, B. Zanga, and F. Baroni, "Quantitative study of hydration of C3S and C2S by thermal analysis," *J. Therm. Anal. Calorim.*, vol. 102, no. 3, pp. 965–973, 2010.
- [182] M. Chabannes, E. Garcia-Diaz, L. Clerc, and J.-C. Bénézet, "Studying the hardening and mechanical performances of rice husk and hemp-based building materials cured under natural and accelerated carbonation," *Constr. Build. Mater.*, vol. 94, pp. 105–115, 2015.
- [183] N. Soltani, a. Bahrami, M. I. Pech-Canul, and L. a. González, "Review on the physicochemical treatments of rice husk for production of advanced materials," *Chem. Eng. J.*, vol. 264, pp. 899–935, 2015.
- [184] R. Hanley and S. Pavía, "A study of the workability of natural hydraulic lime mortars and its influence on strength," *Mater. Struct.*, vol. 41, no. 2, pp. 373–381, 2008.
- [185] M. Carrier, A. Loppinet-Serani, D. Denux, J.-M. Lasnier, F. Ham-Pichavant, F. Cansell, and C. Aymonier, "Thermogravimetric analysis as a new method to determine the lignocellulosic composition of biomass," *Biomass and Bioenergy*, vol. 35, no. 1, pp. 298–307, 2011.
- [186] M. Le Troëdec and C. Peyratout, "Physico-chemical modifications of the interactions between hemp fibres and a lime mineral matrix: impacts on mechanical properties of mortars," *Proc. 10th ECerS Con*, pp. 451–456, 2007.
- [187] B. S. Ndazi, S. Karlsson, J. V. Tesha, and C. W. Nyahumwa, "Chemical and physical modifications of rice husks for use as composite panels," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 38, no. 3, pp. 925–935, 2007.
- [188] S. F. S. Draman, R. Daik, F. A. Latif, and S. M. El-Sheikh, "Characterization and thermal decomposition kinetics of kapok (*Ceiba pentandra* L.)-based cellulose," *BioResources*, vol. 9, no. 1, pp. 8–23, 2014.
- [189] E. Terpáková, L. Kidalová, a. Eštoková, J. Čigášová, and N. Številová, "Chemical Modification of Hemp Shives and their Characterization," *Procedia Eng.*, vol. 42, no. August, pp. 931–941, Jan. 2012.
- [190] S. M. Morsi, A. Pakzad, A. Amin, R. S. Yassar, and P. a. Heiden, "Chemical and nanomechanical analysis of rice husk modified by ATRP-grafted oligomer," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 360, no. 2, pp. 377–385, 2011.
- [191] W. Nakbanpote, B. a. Goodman, and P. Thiravetyan, "Copper adsorption on rice husk derived materials studied by EPR and FTIR," *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 304, no. 1–3, pp. 7–13, 2007.



- [192] H. Yu, R. Liu, D. Shen, Y. Jiang, and Y. Huang, "Study on morphology and orientation of cellulose in the vascular bundle of wheat straw," *Polymer (Guildf.)*, vol. 46, no. 15, pp. 5689–5694, 2005.
- [193] P. Albersheim, A. Darvill, K. Roberts, R. Sederoff, and A. Staehelin, "Plant cell walls. From chemistry to biology," *Ann. Bot.*, vol. 108, no. 1, pp. viii–ix, Jul. 2011.
- [194] S.-L. Liu and C.-H. Ho, "Study in the Nature of Silicon in Rice Hull. I. Solubility of the Silicon Part," *J. Chinese Chem. Soc.*, vol. 6, no. 2, pp. 141–153, Mar. 1960.
- [195] A. Bazargan, T. Gebreegziabher, C.-W. Hui, and G. McKay, "The effect of alkali treatment on rice husk moisture content and drying kinetics," *Biomass and Bioenergy*, vol. 70, pp. 468–475, 2014.
- [196] A. Gajewicz, "Characterisation of cement microstructure and pore – water interaction by 1H Nuclear Magnetic Resonance Relaxometry," University of Surrey, 2014.
- [197] J. Escalante-Garcia and J. Sharp, "Variation in the Composition of C-S-H Gel in Portland Cement Pastes Cured at Various Temperatures," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 82, no. 11, pp. 3237–3241, 1999.
- [198] T. Ekström, "Leaching of concrete. Experiments and Modelling Report TVBM-3090.," 2001.
- [199] A. Cheng, S.-J. Chao, and W.-T. Lin, "Effects of Leaching Behavior of Calcium Ions on Compression and Durability of Cement-based Materials with Mineral Admixtures," *Materials (Basel)*, vol. 6, no. 5, pp. 1851–1872, 2013.
- [200] K. Maekawa, T. Ishida, and T. Kishi, *Multi-scale modeling of structural concrete*, CRC Press. Taylor & Francis, 2008.
- [201] V. Pasangulapati, "Devolatilization characteristics of cellulose, hemicellulose, lignin and the selected biomass during thermochemical gasification: experiment and modelling studies.," Oklahoma University, 2010.
- [202] M. M. Kabir, H. Wang, K. T. Lau, and F. Cardona, "Effects of chemical treatments on hemp fibre structure," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 276, pp. 13–23, 2013.
- [203] C. Onésippe, N. Passe-Coutrin, F. Toro, S. Delvasto, K. Bilba, and M.-A. Arsène, "Sugar cane bagasse fibres reinforced cement composites: Thermal considerations," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 41, no. 4, pp. 549–556, Apr. 2010.
- [204] H. Savastano and V. Agopyan, "Transition zone studies of vegetable fibre-cement paste composites," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 21, no. 1, pp. 49–57, 1999.
- [205] V. Agopyan, H. Savastano, V. M. John, and M. a. Cincotto, "Developments on vegetable fibre-cement based materials in Sao Paulo, Brazil: An overview," *Cem. Concr. Compos.*, vol. 27, no. 5, pp. 527–536, 2005.
- [206] J. C. Maso, "Interfacial Transition Zone in Concrete. RILEM Report 11," London, 1996.

- [207] K. Van Breugel, E. a B. Koenders, Y. Guang, and P. Lura, "Modelling of Transport Phenomena at Cement Matrix—Aggregate Interfaces," *Interface Sci.*, pp. 423–431, 2004.
- [208] K. L. Scrivener, A. K. Crumbie, and P. Laugesen, "The interfacial transition zone (ITZ) between cement paste and aggregate in concrete," *Interface Sci.*, vol. 12, no. 4, pp. 411–421, 2004.

# Table des figures

|   |    |
|---|----|
| <b>Figure 1-1.</b> Évolution par région des émissions de CO <sub>2</sub> annuelles provenant de la combustion des énergies fossiles et de la production du ciment de 1850 à 2006 [3] .....  | 6  |
| <b>Figure 1-2.</b> Répartition des consommations énergétiques entre le chauffage et les matériaux de construction des bâtiments en fonction de leurs performances énergétiques et de leur durée de vie [4] .....  | 7  |
| <b>Figure 1-3.</b> Critères pouvant définir un écomatériau de construction [6] .....  | 8  |
| <b>Figure 1-4.</b> Résultats d'une ACV sur différents matériaux de constructions conventionnels et sur une formulation de béton de chanvre [9] .....  | 9  |
| <b>Figure 1-5.</b> Types de sous-produits végétaux suivant les cultures lignocellulosiques [11] .....   | 10 |
| <b>Figure 1-6.</b> (a) Coupe transversale d'une tige de lin (b) Tissus conducteurs de vaisseaux et trachéides du xylème des plantes ligneuses [6] .....   | 11 |
| <b>Figure 1-7.</b> (a) Structure de la paroi cellulaire des végétaux lignocellulosiques [11] (b) Agencement des composants dans les parois lignocellulosiques [47].....   | 13 |
| <b>Figure 1-8.</b> Surfaces de culture du chanvre [49].....   | 15 |
| <b>Figure 1-9.</b> (a) Plant de chanvre (b) Photographie d'une tige de chanvre (c) Micrographie d'une coupe transversale de la tige du chanvre colorée au carmino-vert de Mirande [16] .....  | 16 |
| <b>Figure 1-10.</b> (a) Granulat de chènevotte (b) Coupe transversale d'une particule de chènevotte au MEB [50] .....   | 17 |
| <b>Figure 1-11.</b> Eau absorbée par les granulats de chènevotte initialement secs en fonction du temps [26], [51] .....  | 18 |
| <b>Figure 1-12.</b> Isothermes de sorption/désorption de particules de chènevotte à 20°C [26].....  | 19 |
| <b>Figure 1-13.</b> (a) Passage d'une particule de chènevotte à travers la maille du tamis par sa largeur [52] (b) Courbes granulométriques par analyse d'image et tamisage mécanique (CP : chènevotte pure - CF : chènevotte avec défilage partiel - AI : analyse d'image [27])..... | 21 |
| <b>Figure 1-14.</b> (a) Développement de la résistance en compression de mortiers à base de ciment Portland en fonction de la température durant les 7 premiers jours de cure [58] (b) Micrographies sur sections polies de bétons ordinaires après 1 jour à 20°C ou 60°C [62].....   | 24 |
| <b>Figure 1-15.</b> Diffusion du CO <sub>2</sub> dans le système poreux de mortiers de chaux [68] .....   | 29 |
| <b>Figure 1-16.</b> Résistance en compression de mortiers chaux-métakaolin (MK) comparée à celle de mortiers de chaux pure (CL90-S) [80].....   | 30 |
| <b>Figure 1-17.</b> Effet de la température de cure sur l'acquisition de la résistance en compression de pâtes pures chaux-pouzzolane (cure à humidité saturée) [83].....   | 31 |
| <b>Figure 1-18.</b> Test à la phénolphthaléine sur la section d'un mortier de chaux [86] .....  | 32 |
| <b>Figure 1-19.</b> Distribution porale de pâtes de chaux aérienne en fonction du rapport Eau/Chaux [89].....   | 33 |
| <b>Figure 1-20.</b> Fabrication et mécanismes de prise de la chaux hydraulique naturelle [93] .....   | 34 |
| <b>Figure 1-21.</b> Résistance en compression de mortiers de chaux hydraulique NHL5 après 28 jours à 60%HR suivant le type de granulat et le ratio Liant/Granulat [95] .....  | 36 |
| <b>Figure 1-22.</b> Résistance en compression de mortiers à base de chaux aérienne progressivement substituée par une chaux hydraulique NHL5 (conservation à 60%HR à l'exception des mortiers de chaux hydraulique pure à 95%HR) [102] .....  | 37 |

|   |    |
|---|----|
| <b>Figure 1-23.</b> Applications du béton de chanvre [6] .....  | 39 |
| <b>Figure 1-24.</b> (a) Formulation du béton de chanvre en laboratoire, (b) Densité apparente des bétons de chanvre à l'état sec en fonction du ratio massique Liant/Granulat (L/G) [4], [10], [25]–[28], [103], [104] .....  | 40 |
| <b>Figure 1-25.</b> (a) Densité apparente des bétons de chanvre à l'état sec en fonction du rapport Eau/Liant (E/L) [4], [10], [25]–[28], [103], [104], (b) Cinétique de séchage des éprouvettes de béton de chanvre étudiées par Nguyen ( $\phi 10 \times 20$ cm <sup>3</sup> conservées à 20°C – 75%HR) [27] et Nozahic (cubes 15×15×15cm <sup>3</sup> conservés à 20°C – 35%HR) [10] en fonction des dosages et de la contrainte de compactage ..... | 41 |
| <b>Figure 1-26.</b> Triple porosité du béton de chanvre (a) Macroporosité inter-granulaire (b) Porosité intra-granulaire (c) Porosité du liant minéral [28], [34] .....   | 43 |
| <b>Figure 1-27.</b> Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des bétons de chanvre à des humidités relatives différentes selon les auteurs [10], [26], [33] .....   | 43 |
| <b>Figure 1-28.</b> Conductivité thermique à l'état sec en fonction de la masse volumique apparente selon que la mesure est effectuée parallèlement ou perpendiculairement au sens de compactage pour un compactage faible (Cerezo [26]) ou élevé (Nguyen [27]) .....   | 44 |
| <b>Figure 1-29.</b> (a) Isothermes de sorption/désorption d'un échantillon de béton de chanvre [34] (b) Valeurs de MBV des bétons de chanvre, du béton cellulaire et de la brique [28], [34], [110], [111] .....  | 46 |
| <b>Figure 1-30.</b> Allure typique de la courbe [ $\sigma = f(\epsilon)$ ] en compression d'éprouvettes cylindriques de bétons de chanvre faiblement compactés [26] .....   | 48 |
| <b>Figure 1-31.</b> Résistance en compression du béton de chanvre en fonction du ratio massique L/G selon Cerezo [26] .....   | 49 |
| <b>Figure 1-32.</b> Résistance en compression du béton de chanvre en fonction du liant utilisé [25], [101] .....  | 50 |
| <b>Figure 1-33.</b> Résistance en compression en fonction de la densité selon la littérature [104] .....  | 51 |
| <b>Figure 1-34.</b> Résistance en compression à 28 jours de la formulation MUR des bétons de chanvre en fonction du taux d'humidité relative durant la conservation [25] .....  | 52 |
| <b>Figure 1-35.</b> Influence de tailles granulométriques croissantes sur les performances mécaniques de bétons de chanvre (a) Nguyen [27] longueur moyenne : 1 = 1,9 mm ; 2 = 2,8 mm ; 3 = 4 mm ; 4 > 5 mm (b) Arnaud et Gourlay [25] longueur moyenne : 1 = 3,1 mm ; 2 = 7,6 mm ; 3 = 8,9 mm .....  | 54 |
| <b>Figure 1-36.</b> Evolution temporelle de la résistance en compression d'un béton de chanvre à base du liant PF70 en formulation type MUR selon Arnaud et Gourlay [25] .....  | 54 |
| <b>Figure 1-37.</b> Force d'adhésion d'un mortier sur un substrat poreux en fonction du taux d'absorption du support (brique) [117] .....   | 56 |
| <b>Figure 1-38.</b> Développement de la résistance en compression de pâtes de ciment pur (Water) ou formulées avec la solution de lixiviation des chènevottes (CA/CB/CC) [35] .....   | 57 |
| <b>Figure 1-39.</b> Temps de prise par pénétration à l'aiguille Vicat Pâtes de chaux aérienne (C), chaux-laitiers de haut fourneaux granulés (C-LHFG), chaux-métakaolin (C-M), chaux-cendres de balles de riz (C-CBR) formulées avec une eau de gâchage pure ou avec une solution de lixiviation de la chènevotte dans l'eau (SL) pendant 45 minutes [118] .....  | 58 |
| <b>Figure 1-40.</b> Résistance en compression des pâtes de chaux pure et chaux/pouzzolane suivant la présence des extraits de chènevotte (SL) [118] .....   | 58 |
| <b>Figure 1-41.</b> Voies d'amélioration des agrobétons type bétons de chanvre .....  | 60 |
| <b>Figure 1-42.</b> (a) Bassins rizicoles de Camargue (b) Gerbes de riz .....   | 64 |
| <b>Figure 1-43.</b> (a) Glumelles autour du grain de riz (b) Balles de riz en vrac [128] .....  | 65 |

|  |     |
|--|-----|
| <b>Figure 1-44.</b> (a) Répartition de la silice amorphe sur une coupe transversale de balle de riz [131] (b) Coupe transversale de la balle de l'épiderme externe à l'épiderme interne [137] (c) Morphologie de l'épiderme externe de la balle de riz [137] (d) coupe transversale de la zone vascularisée [137] .....  | 66  |
| <b>Figure 1-45.</b> Résistances en compression à 28 jours de mortiers ou bétons à base de ciment et de balles de riz issues de la littérature en fonction de la densité apparente (a) Sur une large gamme de densités (b) Pour les études traitant de bétons dont la densité est inférieure à $800 \text{ kg.m}^{-3}$ [1], [2], [146]–[148] .....  | 70  |
| <b>Figure 2-1.</b> Granulats végétaux (a) Chènevotte commerciale (b) Balles de riz naturelles .....  | 73  |
| <b>Figure 2-2.</b> Courbes ATG des chaux anhydres .....  | 74  |
| <b>Figure 2-3.</b> Spectres DRX des chaux anhydres (a) NHL3.5 (b) CL90-S [102], [150] .....  | 75  |
| <b>Figure 2-4.</b> Modes de conditionnement des éprouvettes après leur fabrication selon la cure (a) Conservation standard à l'intérieur en ambiance contrôlée ( $20^{\circ}\text{C} - 50\%\text{HR}$ ) (b) Conservation extérieure sous abris (c) Conservation en enceinte de carbonatation accélérée (d) Cure humide ( $95\%\text{HR}$ ) à température ambiante ( $20^{\circ}\text{C}$ ) et à température élevée ( $50^{\circ}\text{C}$ )..... | 79  |
| <b>Figure 2-5.</b> Images binarisées des particules végétales sous ImageJ (a) Balles de riz – (b) Chènevotte .....   | 80  |
| <b>Figure 2-6.</b> (a) Méthode de l'ellipse selon Igathinathane et al. [52] (b) Diamètre équivalent surface [10].....  | 81  |
| <b>Figure 2-7.</b> (a) Immersion de la passoire sphérique dans l'eau (b) Centrifugation de la passoire (c) Pesée à des intervalles de temps donnés .....   | 83  |
| <b>Figure 2-8.</b> Schéma de principe de l'ATR [153].....  | 84  |
| <b>Figure 2-9.</b> Appareil (a) et sondes (b) de mesure de la conductivité thermique (CT-Mètre) .....  | 86  |
| <b>Figure 2-10.</b> (a) Montage de l'essai de compression (b) Courbe $\sigma = f(\epsilon)$ et caractéristiques mécaniques ( $R_c$ : Résistance en compression, $E_p$ : module apparent, $E_c$ : module élastique).....  | 88  |
| <b>Figure 2-11.</b> Méthode des tangentes pour quantifier les espèces minéralogiques en présence au sein du liant durci à partir des courbes TG (% de perte de masse) .....  | 89  |
| <b>Figure 3-1.</b> Compaction process of the mixture in the mould.....   | 99  |
| <b>Figure 3-2.</b> Data acquisition of temperature and relative humidity during 2 months.....  | 99  |
| <b>Figure 3-3.</b> (a) Hot wire typical thermogram (b) Thermal conductivity measurement with the thermal probe .....   | 101 |
| <b>Figure 3-4.</b> (a) Cumulative granulometric distribution of rice husks and hemp hurd aggregates (b) Statistical dispersion of the equivalent area diameter and binary images from ImageJ .....   | 102 |
| <b>Figure 3-5.</b> Cross-sectional SEM pictures of rice husk (a) and hemp hurd (b) .....   | 105 |
| <b>Figure 3-6.</b> Pore size distribution by mercury porosimetry .....   | 106 |
| <b>Figure 3-7.</b> Mass relative water absorption of rice husks compared to hemp hurd aggregates .....   | 107 |
| <b>Figure 3-8.</b> W/B mass ratio calculation using water absorption test results.....   | 108 |
| <b>Figure 3-9.</b> Kinetic curves of hydric stabilization at $20^{\circ}\text{C} - 50\%\text{RH}$ (ISC) and for the outdoor exposure (OC).....   | 109 |
| <b>Figure 3-10.</b> Degree of porosity for the different mixtures (various B/A from 1.5 to 2.5).....   | 110 |
| <b>Figure 3-11.</b> Thermal conductivity of LRC and LHC mixtures depending on the apparent density (a) and the B/A mass ratio (b) – HS: Hydric stabilization, D: Dry state .....   | 112 |
| <b>Figure 3-12.</b> Stress-strain curves for concrete specimens in compression.....  | 113 |

|   |     |
|---|-----|
| <b>Figure 3-13.</b> (a) Average compressive strength for 30 days and 60 days (b) Average elastic modulus depending on curing conditions of concrete specimens .....   | 115 |
| <b>Figure 3-14.</b> TG curves of samples collected in the bulk (B) or on the surface (S) of concrete specimens tested in compressive strength after 30 days (a) ISC (b) OC.....   | 116 |
| <b>Figure 3-15.</b> Schematic representation of parameters influencing the mechanical strength of LRC and LHC studied in this work .....  | 118 |
| <b>Figure 3-16.</b> Influence des caractéristiques de la balle de riz sur la formulation et les propriétés du béton.....  | 119 |
| <b>Figure 4-1.</b> Data acquisition of temperature and relative humidity during 10 months of outdoor exposure (a) RH and temperature profiles (b) LRC-LHC specimens after demoulding (c) RH variations during outdoor exposure..... | 129 |
| <b>Figure 4-2.</b> Variation of relative humidity and residual water content in specimens during the initial conditioning .....   | 130 |
| <b>Figure 4-3.</b> Illustration of the CO <sub>2</sub> curing system of concrete specimens .....  | 132 |
| <b>Figure 4-4.</b> Characteristic stress-strain curve of a plant-based concrete specimen .....  | 133 |
| <b>Figure 4-5.</b> Powder sampling and sieving for TGA.....   | 134 |
| <b>Figure 4-6.</b> CO <sub>2</sub> consumption in relation to the Ca(OH) <sub>2</sub> content.....  | 135 |
| <b>Figure 4-7.</b> Compressive strength of LHC and LRC for increasing ages and different curing conditions (ISC: 20°C – 50%HR – OC: Outdoor exposure).....  | 138 |
| <b>Figure 4-8.</b> Elastic moduli calculated on load cycles for increasing ages: (a) LRC (b) LHC (ISC: 20°C – 50%HR – OC: Outdoor exposure).....  | 139 |
| <b>Figure 4-9.</b> Compressive strength of LRC and LHC specimens after ACC compared to natural conditions .....   | 140 |
| <b>Figure 4-10.</b> Cross sectional view of specimens after failure in compression a few seconds after spraying with phenolphthalein .....  | 141 |
| <b>Figure 4-11.</b> %CaCO <sub>3</sub> in bulk samples of specimens up to 10 months under natural conditions and after ACC .....  | 143 |
| <b>Figure 4-12.</b> TGA curves of lime samples between 40°C and 400°C (a) Curing under natural conditions after 30 days (30d) and 10 months (10m) (b) Comparison with ACC ( B: Bulk – S: Surface) .....                             | 144 |
| <b>Figure 4-13.</b> Correlation between %CO <sub>2</sub> release by decarbonation of CaCO <sub>3</sub> and loss of water bound to C–S–H hydrates for bulk samples under natural conditions and after ACC .....                      | 146 |
| <b>Figure 4-14.</b> Schéma récapitulatif.....   | 149 |
| <b>Figure 5-1.</b> (a) Prismatic lime mortars (b) Plant-based concretes.....  | 160 |
| <b>Figure 5-2.</b> SEM observation of the transition zone between aggregates and lime in pellets .....  | 163 |
| <b>Figure 5-3.</b> Stress-Strain curves during compression test of plant-based concrete specimens after 1 month – (a) LRC (b) LHC .....   | 164 |
| <b>Figure 5-4.</b> FTIR spectra of raw and treated hemp hurds.....  | 166 |
| <b>Figure 5-5.</b> FTIR spectra of raw and treated rice husks for convex and concave surfaces.....  | 167 |
| <b>Figure 5-6.</b> SEM pictures of aggregate surface. Hemp hurd: (a) Raw (b) Treated – Rice husk convex surface: (c) Raw (d) Treated – Rice husk concave surface: (e) Raw (f) Treated .....   | 168 |
| <b>Figure 5-7.</b> Compressive strength of lime mortars cured under different environments after 28 days.....   | 170 |

|  |     |
|--|-----|
| <b>Figure 5-8.</b> (a) TGA curves of powdered matrix samples collected in the bulk of NHL3.5 mortars after 28 days (b) %Water bound to C–S–H for NHL3.5 and NHL3.5/CL90-S mortars.....   | 172 |
| <b>Figure 5-9.</b> BSE-SEM images of polished cross sections of NHL3.5 mortars after 28 days. (a) 28d–ISC mortar, (b) 7d–TA mortar, (c) C <sub>2</sub> S grain with C–S–H rim in 7d–TA mortar .....  | 174 |
| <b>Figure 5-10.</b> Compressive strength of plant-based concretes cured under different environments after 28 days.....  | 175 |
| <b>Figure 5-11.</b> TG/DTG curves of bulk samples collected in plant-based concretes after 28 days depending on curing conditions (LHC and LRC are represented by the same curve for 28d–ISC).....   | 177 |
| <b>Figure 5-12.</b> Lime-aggregate interfaces by SEM on pellets cured 14 days (a), (c) Curing under ISC (b), (d) Moist-cured or thermally activated pellets (a), (b) Hemp-Lime interface (c), (d) Rice husk-Lime interface .....   | 178 |
| <b>Figure 5-13.</b> Schematic view of mechanisms involved in the influence of curing conditions on the interface between lime binder and hemp aggregates (a) After mixing (b) Under indoor standard conditions (20°C – 50%RH), (c) Under moist curing (20°C – 95%RH) ..... | 180 |
| <b>Figure 5-14.</b> Schéma récapitulatif à propos de l’influence des conditions de cure sur les performances mécaniques des bétons végétaux à base de chaux étudiés dans ce travail .....  | 184 |



# Liste des tableaux

|  |     |
|--|-----|
| <b>Tableau 1-1.</b> Valorisation de ressources lignocellulosiques dans des matrices minérales .....  | 13  |
| <b>Tableau 1-2.</b> Masses volumiques et porosités du granulat de chènevotte [27] .....  | 17  |
| <b>Tableau 1-3.</b> Taux d'absorption en eau de différents granulats de chènevotte après 5 minutes d'immersion (selon les auteurs) .....   | 18  |
| <b>Tableau 1-4.</b> Composition chimique de la chènevotte (en pourcentage massique) .....  | 21  |
| <b>Tableau 1-5.</b> Composition minéralogique du ciment Portland CEM I [6] .....   | 22  |
| <b>Tableau 1-6.</b> Composition minéralogique de la chaux aérienne CL90-S [67] .....   | 27  |
| <b>Tableau 1-7.</b> Composition minéralogique des chaux hydrauliques naturelles NHL [94] .....   | 35  |
| <b>Tableau 1-8.</b> Caractéristiques et performances mécaniques minimales des applications du béton de chanvre sur des échantillons stabilisés à 20°C et 50%HR [6], [25], [104] .....                                    | 39  |
| <b>Tableau 1-9.</b> Conductivité thermique de la formulation MUR du béton de chanvre comparée celle de matériaux de construction usuels [28], [30], [108], [109] .....   | 45  |
| <b>Tableau 1-10.</b> Description des formulations étudiées par [25] et [101] et dont la résistance en compression est reportée en Figure 1-32 .....  | 50  |
| <b>Tableau 1-11.</b> Récapitulatif des formulations obtenues par plusieurs études en comparant le béton de référence (R) et le béton obtenu après un procédé visant à améliorer les propriétés mécaniques (P) .....      | 63  |
| <b>Tableau 1-12.</b> Masses volumiques et porosités des balles de riz .....  | 67  |
| <b>Tableau 1-13.</b> Composition chimique de la balle de riz [48], [144] .....   | 68  |
| <b>Tableau 1-14.</b> Descriptif des formulations .....   | 69  |
| <b>Table 2-1.</b> Caractéristiques physico-chimiques des chaux utilisées .....   | 74  |
| <b>Table 3-1.</b> Lightweight concrete categories .....  | 95  |
| <b>Table 3-2.</b> Material densities of the binders .....  | 96  |
| <b>Table 3-3.</b> B/A mass ratios .....  | 98  |
| <b>Table 3-4.</b> Geometrical characteristics for a cumulative distribution of 50%. Median width ( $W_{50}$ ), equivalent area diameter ( $\Phi_{S-50}$ ), length ( $L_{50}$ ) and elongation factor ( $EF_{50}$ ) ..... | 103 |
| <b>Table 3-5.</b> Physical characteristics of rice husks and hemp hurd aggregates .....  | 104 |
| <b>Table 3-6.</b> Estimation of the internal open porosity of a husk and a hemp particle .....   | 105 |
| <b>Table 3-7.</b> Chemical composition of hemp hurd and rice husk .....  | 107 |
| <b>Table 3-8.</b> Mix proportions .....  | 108 |
| <b>Table 3-9.</b> Average apparent densities of LRC and LHC after 60 days of hardening .....   | 110 |
| <b>Tableau 3-10.</b> Récapitulatif des principales caractéristiques des granulats .....  | 119 |
| <b>Tableau 3-11.</b> Densité, conductivité thermique et résistance à la compression de la formulation L/G = 2 .....  | 120 |
| <b>Table 4-1.</b> Main mineralogical components of CL90-S and NHL3.5 .....   | 127 |

|  |     |
|--|-----|
| <b>Table 4-2.</b> Dosages and bulk density of the mixes in the fresh state .....   | 128 |
| <b>Table 4-3.</b> $\text{Ca(OH)}_2$ content for 3 specimens in each enclosure and deduced maximum mass of $\text{CO}_2$ consumed compared to that obtained in the experimentation until the end - ACC..... | 136 |
| <b>Table 4-4.</b> Calculation of the ROC by weight gain during ACC.....  | 136 |
| <b>Table 4-5.</b> Bulk density of specimens for increasing ages in $\text{kg.m}^{-3}$ .....  | 139 |
| <b>Table 4-6.</b> Overview of ROC for specimens cured 10 months under natural conditions (ISC and OC) and after ACC with different methods ( $\text{CO}_2$ consumption, weight gain and TGA) .....         | 143 |
| <b>Table 5-1.</b> Absorption rate of raw (R) and lime-water treated (LWT) aggregates .....   | 158 |
| <b>Table 5-2.</b> Chemical and mineralogical composition of lime binders in weight percentages .....   | 158 |
| <b>Table 5-3.</b> Mix proportions of lime-based mortars .....  | 159 |
| <b>Table 5-4.</b> Mix proportions and bulk density of plant-based concretes in the fresh state.....  | 159 |
| <b>Table 5-5.</b> Curing histories of lime mortars and plant-based concretes specimens (ISC: Indoor Standard Conditions, MC: Moist Curing, TA: Thermal Activation) .....                                   | 160 |
| <b>Table 5-6.</b> Mechanical characteristics of concretes designed with Raw (R) or $\text{Ca(OH)}_2$ -treated aggregates (LWT) after 1 month .....   | 163 |
| <b>Table 5-7.</b> Vibrations of functional groups present in rice husk and hemp hurds .....  | 165 |
| <b>Table 5-8.</b> Bulk densities ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) of lime mortars before compression test (28 days) .....  | 171 |
| <b>Table 5-9.</b> Results from TGA performed in the bulk of mortars to characterize carbonation .....  | 173 |
| <b>Table 5-10.</b> Average bulk densities of plant-based concretes after 28 days .....   | 174 |
| <b>Table 5-11.</b> Average cycle modulus ( $C_M$ ) of plant-based concretes cured under different environments after 28 days.....  | 176 |

# Résumé

L'optimisation des performances énergétiques du bâtiment et la réduction des émissions de CO<sub>2</sub> générées par le secteur de la construction sont devenus des enjeux majeurs. Il s'agit non seulement de réduire considérablement les consommations d'énergie liées au chauffage et à la climatisation durant la période de fonctionnement des bâtiments mais aussi de choisir des matériaux à faible impact carbone en privilégiant l'utilisation de ressources renouvelables et locales.

Ces dernières années ont vu naître un intérêt croissant pour les bétons de chanvre. Ces agromatériaux associent un granulats végétal issu de la tige du chanvre avec un liant minéral. Il en résulte un matériau isolant qui présente une certaine efficacité à réguler les variations de température et d'humidité. Considérés comme multifonctionnels, les bétons de chanvre constituent une alternative écologique aux enveloppes traditionnelles. Face aux matériaux à isolation répartie comme le béton cellulaire ou la brique dont l'impact carbone est élevé, les bétons de chanvre présentent l'inconvénient d'être peu résistants mécaniquement et sont de ce fait associés à une structure porteuse.

Ce travail de thèse s'inscrit dans une démarche visant d'une part à diversifier la ressource végétale utilisée pour la confection des agromatériaux de construction en développant un béton innovant incorporant les balles de riz de Camargue et d'autre part à étudier certains procédés dans l'optique d'améliorer les performances mécaniques de ces matériaux après les premiers mois de cure.

Le premier objectif a consisté à caractériser la balle de riz naturelle préalablement à son association avec un liant à base de chaux. Les caractéristiques propres au granulats de balles de riz se sont traduites par la fabrication d'un agrobéton moins dosé en eau et de densité apparente plus élevée que celle du béton de chanvre (en restant inférieure à 800 kg.m<sup>-3</sup>). La conductivité thermique du béton à base de balles de riz s'est montrée similaire à celle du béton de chanvre pour un ratio massique liant/granat (L/G) identique. En revanche, les performances mécaniques en compression se sont révélées plus faibles pour le béton à base de balles de riz après 1 mois de cure à 20°C et 50%HR.

Le second axe de travail s'est porté sur le suivi temporel des caractéristiques mécaniques et du durcissement du liant jusqu'à 10 mois de conservation soit à 20°C et 50%HR soit en conditions extérieures. Les bétons de chanvre se sont caractérisés par un gain de résistance en compression plus favorable que celui observé sur les bétons de balles de riz malgré une cinétique de durcissement du liant équivalente. Cette conservation naturelle a été comparée à une cure en carbonatation accélérée (CO<sub>2</sub>). Les résultats ont montré que ce procédé a permis d'obtenir une résistance en compression 2 mois après la fabrication des éprouvettes équivalente à celle obtenue après 10 mois de conservation à l'extérieur.

Considérant que la résistance mécanique du béton à base de balles de riz est limitée par la liaison mécanique liant/particule, ce travail s'est porté également sur l'effet d'un traitement des particules à l'eau de chaux saturée. S'il s'est montré inefficace pour le béton de chanvre, il a permis d'améliorer la résistance en compression des bétons à base de balles de riz.

Enfin, cette étude a traité de l'effet d'une cure humide (95%HR) et d'une élévation de température (50°C) sur le durcissement du liant et l'acquisition des résistances mécaniques à court terme. L'étude a été préalablement menée sur des mortiers de chaux. Les résultats ont montré que ce type de cure permet une très forte augmentation de la résistance mécanique du liant après 28 jours par un effet cinétique sur les réactions d'hydratation. Toutefois, ces conditions de cure ont entraîné une perturbation de la zone de transition entre le liant et la particule et par conséquent une dégradation des propriétés mécaniques des agrobétons.

## Mots-clefs

Balle de riz – Chènevotte – Chaux – Béton de Chanvre – Béton de Balles de riz – Propriétés mécaniques  
Carbonatation accélérée – Hydratation – Conditions de cure – Eau de chaux

# Abstract

The improvement of energy efficiency of our buildings and the reduction of CO<sub>2</sub> emissions from the construction industry have become a major issue over the last years. We need to cut the energy consumption linked to heating and cooling of buildings during their operating period but also to choose materials with low carbon footprint using renewable and local resources.

Hemp concretes are more and more used in green construction. These bio-based building materials consist of hemp-derived aggregates mixed with mineral binders and water. These concretes have attractive insulating properties and present some effectiveness in buffering variations of temperature and humidity in buildings. Considered as a multifunctional material, hemp concrete can offer an eco-friendly alternative to traditional building envelopes but has the disadvantage of being very low strength. Unlike cellular concrete or clay bricks, hemp concretes cannot be used as load-bearing materials but for infilling walls with a wood timber frame.

The aim of this work is, on the one hand, to diversify plant aggregates used for the manufacturing of bio-based concretes by developing an innovative material based on local rice husk from the Camargue area and on the other hand to investigate some processes in order to increase the mechanical strength of these materials after the first months of curing.

The first objective of this work was to characterize rice husks prior to incorporating them in a lime-based mix. Intrinsic features of rice husks led to the manufacturing of a new bio-based concrete designed with a lower water content and a higher apparent density than hemp concrete (by remaining below 800 kg.m<sup>-3</sup>). Thermal conductivity of rice husk concrete was comparable to that of hemp concrete for a given binder on aggregates (B/A) mass ratio. Nevertheless, mechanical performances in compression have proved lower for the rice husk concrete after one month of hardening at 20°C and 50%RH.

The second line of the work dealt with the evolution of mechanical properties and binder hardening over time. Specimens were cured during 10 months either at 20°C and 50%RH or exposed outdoors. Hemp concrete exhibited a higher compressive strength gain over time than that achieved for rice husk concrete despite a same hardening kinetics. This curing under natural carbonation was compared to an accelerated one (CO<sub>2</sub> curing). Accelerated carbonation provided the opportunity to obtain the same compressive after 2 months than that reached after outdoor exposure during 10 months.

Considering that compressive strength of rice husk concrete is restricted by the bonding strength between the binder and the aggregates, this work also focused on the effect of a lime-water treatment of plant aggregates. This latter was not efficient for hemp concrete but increased compressive strength of rice husk concrete.

Finally, the effect of a moist curing (95%RH) and elevated temperature (50°C) on binder hardening and strength development of bio-based concretes was investigated. This aspect was also studied on lime-based mortars. The results showed that this type of curing led to a strong increase of mechanical strength for the binder after 28 days due to kinetic effects on hydration reactions. Nevertheless, these curing conditions were detrimental to the transition zone between the binder and the plant aggregates and consequently counterproductive for the mechanical performances of bio-based concretes.

## Keywords

Rice husk – Hemp hurd – Lime binder – Hemp concrete – Rice husk concrete – Mechanical properties – Accelerated carbonation – Hydration – Curing conditions – Lime water